www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

PHILIPS TECHNISCH TIJDSCHRIFT

JAARGANG 31, 1970, no. 2

Fotomagnetische verschijnselen

U. Enz en R. W. Teale

Kort geleden is aan een aantal magnetische stoffen een soort verschijnselen ontdekt dat men zou kunnen beschouwen als tegenhanger van de reeds in de vorige eeuw door Faraday ontdekte magneto-optische verschijnselen. Het onderzoek aan deze fotomagnetische verschijnselen heeft zich tot nu toe geconcentreerd op de fysische achtergronden. Het artikel geeft hiervan een overzicht. Toepassingsmogelijkheden zullen vooral liggen op het gebied van opslag en verwerking van informatie.

Sinds enige jaren kennen we stoffen waarvan de magnetische eigenschappen door bestraling met zichtbaar en infrarood licht zijn te beïnvloeden. De veranderingen, die in de tot nu toe onderzochte gevallen alleen optreden bij temperaturen beneden kamertemperatuur, zijn bij voldoend lage temperatuur blijvend zolang het materiaal op deze lage temperatuur gehouden wordt; bij een wat hogere temperatuur keert na afloop van de belichting de uitgangstoestand langzaam weer terug. Deze fotomagnetische verschijnselen, waarbij door fotonen veranderingen in de magnetische eigenschappen van de stof worden teweeggebracht, moeten worden onderscheiden van de magneto-optische verschijnselen (zoals b.v. Faraday-rotatie), waarbij de optische eigenschappen van een stof worden beïnvloed door zijn magnetisatietoestand.

De eerste waarneming van een fotomagnetisch effect bestond hierin, dat de door afkoeling in een magneetveld veroorzaakte extra magnetische anisotropie van met silicium gedoteerd yttrium-ijzergranaat was te veranderen door belichten met een gloeilamp [1]. Waarnemingen van hiermee verwante verschijnselen, zoals door licht veroorzaakte veranderingen van beginpermeabiliteit en coërcitieve veldsterkte, zijn kort daarop gevonden, zowel bij het reeds genoemde yttrium-ijzergranaat [2] [4], als bij $CdCr_2Se_4$ gedoteerd met gallium [3] [4].

Dr. U. Enz, medewerker van Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven; dr. R. W. Teale, senior lecturer in physics aan de Universiteit van Sheffield, Engeland.

Al deze verschijnselen kunnen we verklaren door uit te gaan van een inwendig foto-effect: een elektron, bij lage temperatuur gebonden aan een bepaalde plaats in het kristalrooster, kan zich onder invloed van licht bewegen. Deze beweging van een elektron is equivalent met de verplaatsing van een meerwaardig ion. Is nu de bouw van het kristalrooster zodanig dat ionen van een bepaalde waardigheid al naar hun plaats in dit rooster een verschillende invloed hebben op de magnetische eigenschappen van de stof, dan is het directe gevolg van de door belichten veroorzaakte verplaatsing van deze ionen een verandering in de waarden der magnetische grootheden.

Wij geven hier eerst de waarnemingen van het anisotropie-effect van yttrium-ijzergranaat en metingen van de invloed van licht op beginpermeabiliteit en coërcitieve veldsterkte, zowel voor yttrium-ijzergranaat als voor $CdCr_2Se_4$. In beide gevallen worden de waarnemingen verklaard aan de hand van een model. Vergelijking van de gebruikte modellen geeft een inzicht in de omstandigheden waaronder de twee groepen verschijnselen optreden.

Tot slot worden dan nog enige mogelijke toepassingen voor de fotomagnetische effecten genoemd.

[1] R. W. Teale en D. W. Temple, Phys. Rev. Letters **19**, 904, 1967.
[2] U. Enz en H. van der Heide, Solid State Comm. **6**, 347, 1968.
[3] W. Lems, P. J. Rijnierse, P. F. Bongers en U. Enz, Phys. Rev. Letters **21**, 1643, 1968.
[4] U. Enz, W. Lems, R. Metselaar, P. J. Rijnierse en R. W. Teale, IEEE Trans. **MAG-5**, 467, 1969 (no. 3).

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Anisotropie-effect

Yttrium-ijzergranaat, de stof waaraan invloed van licht op de magnetische anisotropie het eerst is gevonden, dankt zijn naam aan de overeenkomst in kristalstructuur met de halfedelsteen granaat. (Engels: yttrium iron garnet, doorgaans afgekort als YIG.) De zuivere stof heeft de formule $Y_3Fe_5O_{12}$ en is alleen in synthetische vorm bekend. Het voor onze experimenten met silicium gedoteerde materiaal had bij de synthese de nominale chemische samenstelling $Y_3Fe^{3+}_{5-2x}(Fe^{2+}Si^{4+})_xO_{12}$, waarbij $0{,}1 < x < 0{,}3$. Analyse van het syntheseprodukt gaf echter lagere waarden voor x. Bij de dotering is een deel van het driewaardige ijzer vervangen door vierwaardig silicium; hierbij wordt, ter compensatie van het zo veroorzaakte ladingsoverschot, een even grote fractie der ferri-ionen gereduceerd tot ferro-ionen.

Het anisotropie-effect is gevonden aan monokristallijne preparaten. De magnetisatie is in monokristallen gebonden aan één of meer voorkeursrichtingen, die door de kristalstructuur worden bepaald. Bij yttrium-ijzergranaat zijn dit de lichaamsdiagonalen van de kubusvormige elementaire cel, de kristallografische ⟨111⟩-richtingen. De sterkte van deze binding kan beschreven worden door een anisotropieveld. De uitgevoerde experimenten, waarop we niet in detail willen ingaan, waren magnetische resonantie-experimenten. Hierbij werd in ons geval de som van het anisotropieveld in een bepaalde richting en het in dezelfde richting aangelegde uitwendige veld constant gehouden. Uit de hiertoe benodigde sterkte van het uitwendige veld kon dus direct het anisotropieveld in de betrokken richting worden afgeleid.

Bij zo'n experiment wordt een monokristallijn bolletje granaat met een diameter van 0,4 mm in het donker in een sterk magnetisch veld afgekoeld tot b.v. 20 °K. We laten het magneetveld hierbij in richting samenvallen met de kristallografische [111]-richting. Brengen we vervolgens, nog steeds in het donker, het uitwendige veld in de richting van een van de andere lichaamsdiagonalen van de elementaire cel (bij voorbeeld de $[11\bar{1}]$-richting), dan blijkt dat er nu een sterker magnetisch veld nodig is om dezelfde magnetisatie teweeg te brengen als in de oorspronkelijke richting. Dit betekent dat de bijdrage van het anisotropieveld, die bij het uitwendige veld moet worden opgeteld, in de $[11\bar{1}]$-richting geringer is dan in de [111]-richting. Met andere woorden: tijdens het afkoelen heeft de magnetisatie een vergrote voorkeur voor de [111]-richting gekregen. Dit invriezen van een magnetische voorkeursrichting wordt veldkoelen genoemd.

In tegenstelling tot andere materialen die dit veldkoeleffect vertonen, is het bij het met silicium gedoteerde YIG mogelijk de ingevroren anisotropie door belichten met een gloeilamp te veranderen (*fig. 1*). Dit verschijnsel noemen we het anisotropie-effect. Zoals in de figuur is te zien, treedt ook in donker al enige relaxatie der ingevroren anisotropie op. De verandering van het anisotropieveld die bij deze experimenten door belichten kan worden bereikt, hangt af van de temperatuur tot welke het preparaat is afgekoeld. Zo is in fig. 1 het verschil ΔH tussen de eindniveaus van de krommen a en b 140 Oe voor een preparaattemperatuur van 20 °K. Hetzelfde preparaat geeft $\Delta H = 200$ Oe bij 4,2 °K; bij 66 °K bedraagt ΔH nog slechts 21 Oe.

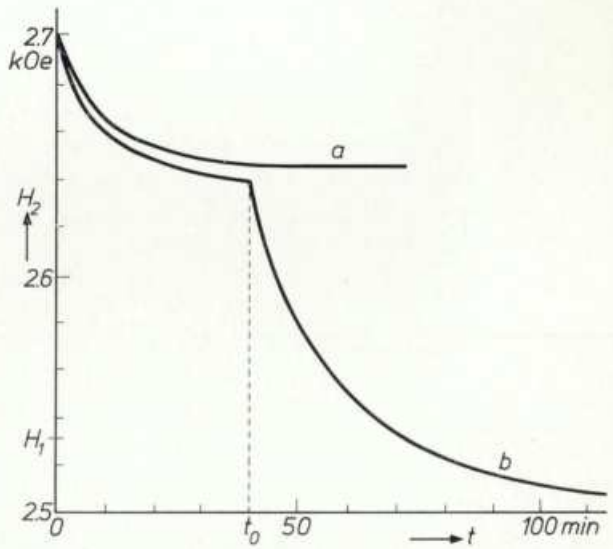


Fig. 1. Het anisotropie-effect van monokristallijn $Y_3Fe_{4,9}Si_{0,1}O_{12}$. Uitgezet is het uitwendige veld H_2 dat nodig is voor het constant houden van de ferromagnetische resonantiefrequentie bij magnetisatie in de $[11\bar{1}]$-richting, als functie van de tijd. Het materiaal is vóór de meting in het donker afgekoeld tot 20 °K in een uitwendig veld in de [111]-richting. Bij 20 °K treedt dan resonantie op in het veld H_1. Op het tijdstip $t = 0$ werd het veld in de $[11\bar{1}]$-richting gedraaid.

Kromme a geldt voor het geval dat het preparaat onbelicht bleef; er treedt enige relaxatie van de anisotropie op. Kromme b geldt voor het geval dat het preparaat vanaf $t = t_0$ met een gloeilamp belicht werd. Hier treedt volledige relaxatie der anisotropie op, d.w.z. na belichting is in de $[11\bar{1}]$-richting een anisotropieveld aanwezig van ongeveer dezelfde grootte als oorspronkelijk in de [111]-richting.

Kristalstructuur van YIG

Alvorens het model te geven waarmee de waargenomen verschijnselen zijn te verklaren, geven we een beschrijving van de kristalstructuur van YIG. Het materiaal heeft een kubische structuur waarin, in het ongedoteerde geval, alle Fe-ionen driewaardig zijn. Er zijn voor deze ionen echter twee verschillende soorten plaatsen in het rooster: plaatsen die tetraëdrisch omringd zijn door vier zuurstofionen en plaatsen die octaëdrisch omringd zijn door zes zuurstofionen. De octaëdrisch omringde Fe^{3+}-ionen vormen een lichaamsgecentreerd kubisch rooster. Een afbeelding van de structuur is gegeven in *fig. 2*.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

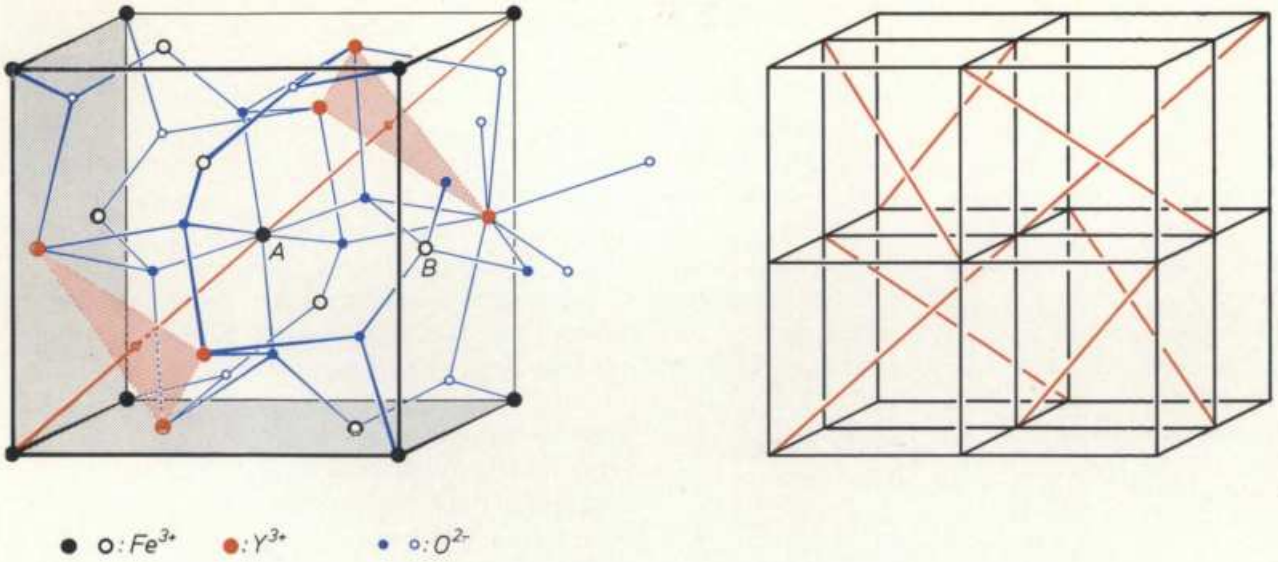


Fig. 2. Kristalstructuur van $Y_3Fe_5O_{12}$ [5] (yttrium-ijzergranaat of YIG). De rechter figuur geeft een volledige elementaire cel weer; de linker figuur geeft de details van een achtste deel hiervan. De rangschikking van de ionen in de volledige cel wordt verkregen wanneer men de links gegeven octant zo met de octanten van de rechter figuur tot dekking brengt dat de rode diagonalen samenvallen.

De door een zwarte punt aangeduide Fe^{3+}-ionen zijn octaëdrisch door zes zuurstofionen omringd en vormen een lichaamsgecentreerd kubisch rooster. De door een zwarte ring aangeduide Fe^{3+}-ionen zijn door vier zuurstofionen tetraëdrisch omringd. Voor de twee Fe^{3+}-ionen *A* en *B* zijn de zes, respectievelijk vier, omringende zuurstofionen als een blauwe punt getekend; de overige zuurstofionen zijn als blauwe ringen getekend.

De twee groepen van drie, door een rood vlak verbonden getekende Y^{3+}-ionen veroorzaken ter plaatse van het Fe^{3+}-ion *A* een drietallige symmetrie. De lokale drietallige as valt samen met de rode diagonaal.

In de directe omgeving van een octaëdrisch omringd Fe^{3+}-ion zijn twee groepjes van drie Y^{3+}-ionen te onderscheiden. Hierdoor wordt een lokale uniaxiale symmetrie ter plaatse van het ijzer veroorzaakt. De plaatselijke drietallige as van symmetrie valt samen met een der lichaamsdiagonalen van de kuben van het lichaamsgecentreerde rooster, de kristallografische ⟨111⟩-richtingen. Naburige octaëdrisch omringde Fe^{3+}-ionen hebben steeds verschillende van de vier mogelijke ⟨111⟩-richtingen als plaatselijke drietallige as.

Wordt in $Y_3Fe_5O_{12}$ een deel van het Fe^{3+} vervangen door Si^{4+}, dan zullen deze siliciumionen steeds tetraëdrisch door zuurstof omringde plaatsen innemen.

Verklaring der waarnemingen

De waarnemingen zijn als volgt te verklaren. Er zijn vier mogelijke soorten plaatsen voor het voor ladingscompensatie nodige Fe^{2+}-ion, of wel: er zijn vier soorten plaatsen waar het door Si^{4+} geleverde extra-elektron gelokaliseerd kan zijn. Door het aanleggen van een uitwendig veld wordt nu die plaats waarvan de lokale drietallige as de kleinste hoek maakt met de veldrichting, energetisch iets voordeliger dan de overige drie ⟨111⟩-richtingen. Het energieverschil is zeer klein vergeleken met de thermische energie bij kamertemperatuur. Bij 20 °K is het evenwel voldoende om een duidelijke overbezetting van de energetisch gunstiger posities te veroorzaken. Daardoor wordt de sterkte van het anisotropieveld in de richting van deze drietallige as vergroot.

Bij 20 °K zijn de elektronen zo weinig beweeglijk dat de bezetting der beschikbare plaatsen zich niet spontaan zal aanpassen aan een door richtingsverandering van het magneetveld veroorzaakte wijziging in het potentiaalputtenlandschap. Eerst de energie van invallende fotonen maakt elektronenbewegingen mogelijk, waardoor de elektronenverdeling, en daarmee de magnetische anisotropie, zich kan aanpassen aan de gewijzigde magnetisatierichting.

Het is zeker dat de veranderingen niet veroorzaakt worden door verwarming van het kristal door het licht: het ingestraalde vermogen was bij onze experimenten te gering om de temperatuur van het bolletje noemenswaard te doen stijgen.

In het bovenstaande is stilzwijgend alleen sprake geweest van ongepolariseerd licht. Bij experimenten met gepolariseerd licht [6] blijkt dat de eindtoestand die bij belichten wordt bereikt, nog een kleine variatie vertoont, afhankelijk van de stand van het polarisatievlak ten opzichte van de kristalassen.

[5] Ontleend aan P. P. Ewald en C. Hermann, Strukturbericht 1913-1926, blz. 364.

[6] R. W. Teale, D. W. Temple, U. Enz en R. F. Pearson, J. appl. Phys. **40**, 1435, 1969 (no. 3).

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Invloed van licht op beginpermeabiliteit en coërcitieve veldsterkte

Bij siliciumconcentraties die wezenlijk lager zijn dan die waarbij het beschreven anisotropie-effect is waar te nemen, ziet men een invloed van belichten op de beginpermeabiliteit en de coërcitieve veldsterkte van yttrium-ijzergranaat. Deze effecten zijn waargenomen [2] [4] aan granaat met een samenstelling $Y_3Fe_{5-x}Si_xO_{12}$, waarbij $x < 0{,}05$ bij de synthese. Door de geringere siliciumconcentratie is het anisotropie-effect nu veel kleiner geworden. Voor de meting van permeabiliteit en coërcitieve veldsterkte zijn uit monokristallen gesneden raampjes of uit geperst poeder gesinterde polykristallijne ringetjes gebruikt (*fig. 3*).

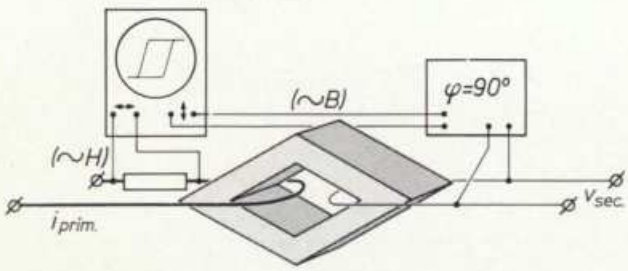


Fig. 3. De meting van beginpermeabiliteit en coërcitieve veldsterkte (schematisch). De primaire winding (links) wordt gevoed met een sinusvormige stroom met een frequentie van 10 kHz. Het verband tussen de in het materiaal optredende magnetische inductie B en de veldsterkte H, de hysteresislus, — op een fazeverschuiving na gelijk aan het verband tussen de secundaire spanning V_{sec} en de primaire stroom i_{prim} — wordt met een katodestraaloscillograaf zichtbaar gemaakt. Bij kleine amplitude van i_{prim} is de B-H-kromme een rechte met als helling de beginpermeabiliteit, bij voldoend grote amplitude van i_{prim} wordt de gehele hysteresislus zichtbaar.
Bij metingen aan monokristallijn materiaal werden ruitvormige raampjes gebruikt, zoals getekend, waarvan de zijden samenvallen met de ⟨111⟩-richtingen van het kristal. Voor metingen aan polykristallijn materiaal werden ringetjes gebruikt.

Experimenten waarbij men een invloed van invallend licht op de grootte van beginpermeabiliteit en coërcitieve veldsterkte van het gedoteerde YIG te zien krijgt, verlopen als volgt. Het materiaal wordt in het donker afgekoeld tot 77 °K en door een monotoon in amplitude afnemend magnetisch wisselveld gedemagnetiseerd. Wordt het materiaal nu met een gloeilamp belicht, dan neemt de beginpermeabiliteit af, en wel voor de polykristallijne ringetjes veel sterker en in veel kortere tijd dan voor de monokristallijne raampjes (*fig. 4*).

De hoeveelheid geabsorbeerde straling blijkt bepalend te zijn voor de verandering der beginpermeabiliteit, zoals volgt uit experimenten waarbij met een flitslamp wordt belicht. Wordt hetzelfde gemiddelde vermogen als bij de proeven met continue belichting toegevoerd in snel opeenvolgende flitsen, dan verloopt de daling der permeabiliteit op precies dezelfde wijze als bij continue bestraling. Wordt belicht met flitsen in een zo langzaam tempo dat het effect van elke individuele flits is te zien, dan neemt men een trapsgewijze daling der permeabiliteit waar (*fig. 5*).

De maximale verandering van de permeabiliteit, $\Delta\mu_r$, die door belichting kan worden teweeggebracht, hangt af van de temperatuur waartoe het materiaal is afgekoeld. Omstreeks 120 °K neemt $\Delta\mu_r$ bij stijgen van de temperatuur sterk af en boven 200 °K is het effect geheel verdwenen.

Zolang de temperatuur van het bestraalde preparaat beneden 150 °K gehouden wordt, blijft de permeabiliteit laag. Eerst bij zodanige verhoging van de temperatuur dat de elektronen voldoende beweeglijk worden, keert de permeabiliteit na afloop van de bestraling terug tot zijn oorspronkelijke waarde. Alleen straling met een golflengte kleiner dan 1,3 μm is in staat de beginpermeabiliteit van yttrium-ijzergranaat te beïnvloeden.

Behalve de beginpermeabiliteit wordt ook de coërcitieve veldsterkte van yttrium-ijzergranaat beïnvloed door elektromagnetische straling. Zoals uit *fig. 6* blijkt, verandert de vorm van de hysteresislus aanzienlijk wanneer het materiaal wordt belicht. Deze effecten zijn ook weer sterker voor polykristallijn dan voor monokristallijn materiaal (*tabel I*). Een interessante demonstratie van de ingrijpende vormveranderingen van de hysteresislus kan met de in fig. 3 geschetste opstelling worden verkregen. Kiezen we nl. de amplitude van de primaire wisselstroom zodanig dat de maximale primaire veld-

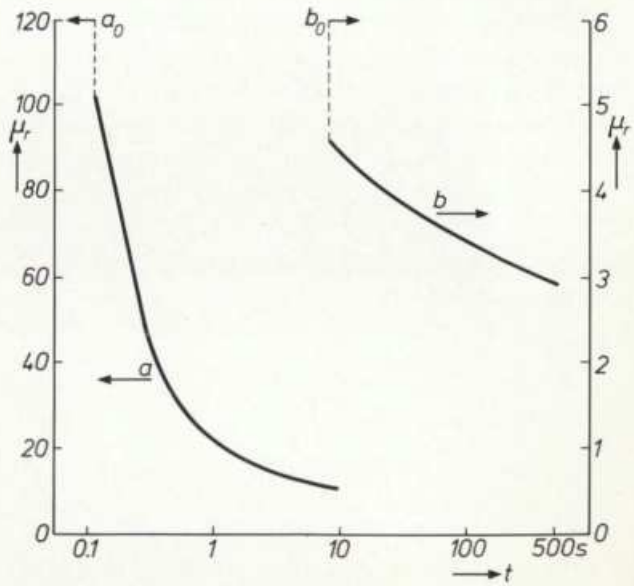


Fig. 4. Het verloop van de relatieve beginpermeabiliteit μ_r van yttrium-ijzergranaat als functie van de tijd t, verlopen sinds het begin van de belichting van een preparaat, gemeten bij een temperatuur van 77 °K. Curve a geldt voor polykristallijn materiaal, samenstelling $Y_3Fe_{5-x}Si_xO_{12}$ met $x = 0{,}006$, curve b voor monokristallijn materiaal met de samenstelling waarbij $x = 0{,}05$.
Om het sterk uiteenlopende gedrag van beide preparaten in één figuur te kunnen weergeven, is een logaritmische tijdschaal gekozen. De permeabiliteit van beide preparaten op het moment $t = 0$ is aangegeven met horizontale pijltjes, respectievelijk gemerkt a_0 en b_0.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

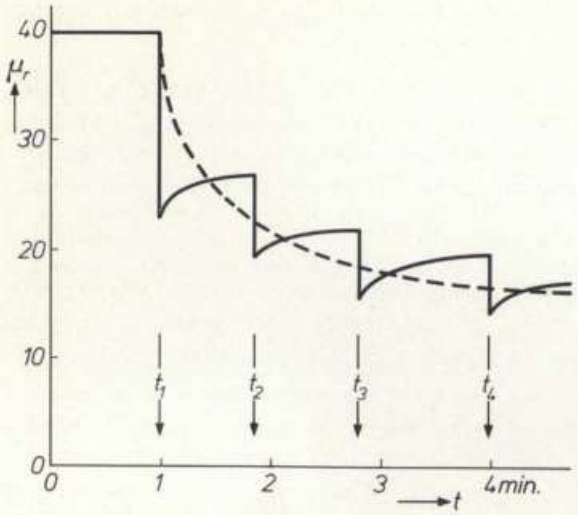


Fig. 5. Daling van de relatieve beginpermeabiliteit μ_r van monokristallijn yttrium-ijzergranaat, samenstelling $Y_3Fe_{5-x}Si_xO_{12}$ met $x = 0{,}025$, door belichting bij 77 °K. De streeplijn geldt voor continue belichting met een intensiteit van 10^{-2} W/cm² vanaf $t = t_1$, de getrokken lijn voor belichting met flitsen (met gemiddeld dezelfde intensiteit) op de tijdstippen t_1, t_2, t_3 en t_4. In het laatste geval vindt de daling steeds binnen 10^{-2} seconde plaats, de op iedere daling der permeabiliteit volgende geringe stijging wordt vermoedelijk door temperatuureffecten veroorzaakt. Duidelijk is hier te zien dat alleen het produkt van belichtingsintensiteit en duur bepalend is voor de eindwaarde van μ_r.

sterkte net iets groter is dan de coërcitieve veldsterkte van het onbelichte materiaal, dan zal per periode van de stroom de hysteresislus van het materiaal éénmaal worden doorlopen. Wordt het ringetje nu belicht, dan neemt de coërcitieve veldsterkte van het materiaal toe. Het primaire veld is niet meer in staat de magnetisatie van richting te doen omkeren en het doorlopen van de hysteresislus houdt op, om eerst na vergroting van de amplitude van het primaire veld weer te beginnen.

Tabel I. Coërcitieve veldsterkte van yttrium-ijzergranaat met samenstelling $Y_3Fe_{5-x}Si_xO_{12}$ bij 77 °K.

	x	onbelicht	belicht
monokristallijn	0,025	0,5 Oe	0,8 Oe
polykristallijn	0,006	0,6 Oe	2,0 Oe

Verklaring voor de waargenomen verschijnselen

Voor de verklaring van het anisotropie-effect hebben we de octaëderplaatsen gekarakteriseerd door de stand van de lokale drietallige as. Voor de verklaring van de zojuist besproken effecten moeten we deze octaëderplaatsen op een andere wijze indelen, nl. op grond van hun afstand tot de Si^{4+}-ionen. De octaëderplaatsen dichtbij een Si^{4+}-ion worden aangeduid als I-, die op grotere afstand daarvan als II-plaatsen. Ten gevolge van de Coulomb-attractie tussen Si^{4+}- en Fe^{2+}-ionen hebben Fe^{2+}-ionen op I-plaatsen een lagere energie dan op II-plaatsen.

Na afkoelen van het materiaal zullen de Fe^{2+}-ionen op de I-plaatsen zijn gelokaliseerd. Door bestraling kunnen elektronen, en daarmee effectief Fe^{2+}-ionen, naar II-plaatsen worden gebracht (dissociatie van het Si^{4+}-Fe^{2+}-paar). Is nu de temperatuur laag genoeg, dan blijven de elektronen op II-plaatsen gelokaliseerd, aangezien zij bij lage temperatuur slechts weinig beweeglijk zijn. Bij hogere temperatuur kan spontane terugkeer naar I-plaatsen mogelijk zijn. Er moet nu worden aangenomen dat Fe^{2+}-ionen op II-plaatsen een sterkere binding der Bloch-wanden aan hun eenmaal ingenomen posities veroorzaken dan Fe^{2+}-ionen op I-plaatsen [7]. Deze sterkere binding resulteert in een grotere weerstand van het materiaal tegen veranderingen der magnetisatie, hetgeen zich uit in een lagere waarde van de beginpermeabiliteit en een hogere waarde van de coërcitieve veldsterkte.

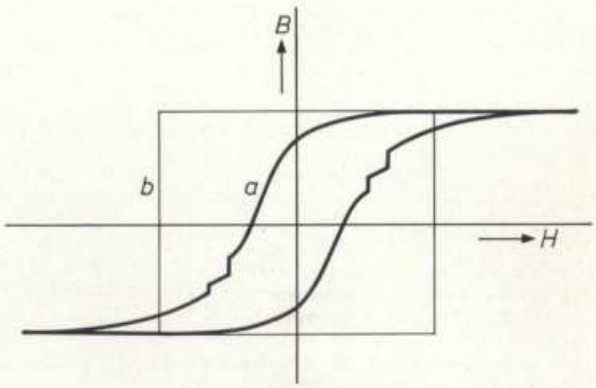


Fig. 6. De hysteresislus van polykristallijn yttrium-ijzergranaat, samenstelling $Y_3Fe_{5-x}Si_xO_{12}$ met $x = 0{,}06$, gemeten bij 77 °K. De lus *a* is gemeten aan onbelicht, de lus *b* aan belicht materiaal. De onregelmatigheden in de curve *a* zijn een gevolg van het Barkhausen-effect, dit is het sprongsgewijs verschuiven van Blochwanden bij continue verandering van het uitwendige veld *H*.

Waarnemingen aan $CdCr_2Se_4$

Behalve bij YIG, gedoteerd met een geringe hoeveelheid silicium, hebben wij ook invloed van belichting op de beginpermeabiliteit gevonden bij $CdCr_2Se_4$ waarin een deel van het tweewaardige cadmium is vervangen door driewaardig gallium [3]. Bij temperaturen beneden 130 °K is deze stof ferromagnetisch. De onderzochte monsters hadden de samenstelling $Cd_{1-y}Ga_yCr_2Se_4$, met $y = 0{,}015$.

Bij 4,2 °K veroorzaakt belichting een blijvende verandering van de beginpermeabiliteit, bij 77 °K daarentegen keert de oorspronkelijke toestand terug wanneer

[7] Bij deze materialen wordt de permeabiliteit in hoofdzaak bepaald door de beweeglijkheid der Bloch-wanden, de scheidingswanden tussen homogeen gemagnetiseerde domeinen met verschillende magnetisatierichting.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

het preparaat weer in het donker gebracht wordt (*fig. 7*). Evenals in het geval van YIG is de verklaring ook hier te geven door uit te gaan van twee typen centra. Door belichting kan weer uit een centrum I een centrum II worden gevormd, dat een sterkere binding van de Bloch-wanden aan hun eenmaal ingenomen plaats geeft.

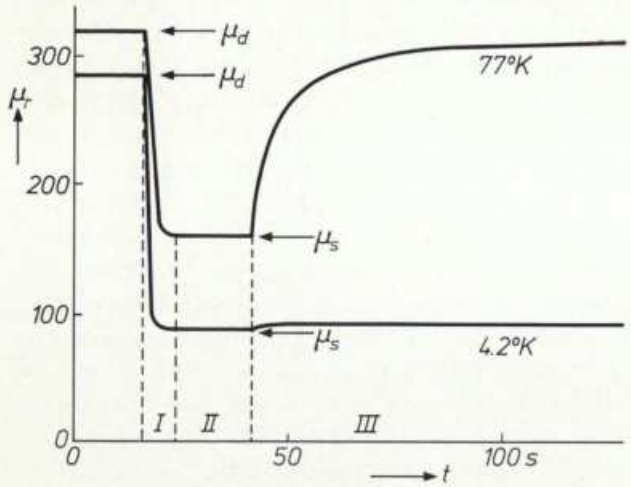


Fig. 7. Verandering der relatieve beginpermeabiliteit μ_r bij belichting van $Cd_{1-y}Ga_yCr_2Se_4$ met $y = 0{,}015$, als functie van de tijd, voor twee temperaturen. De waarden der permeabiliteit in onbelichte toestand (μ_d) en de verzadigingswaarde der permeabiliteit bij belichting (μ_s) zijn aangegeven. Er zijn duidelijk drie stadia te onderscheiden: *I* de permeabiliteit daalt bij het begin der belichting, *II* de permeabiliteit bereikt een stabiele eindwaarde μ_s die bepaald wordt door de belichtingsintensiteit, *III* de permeabiliteit herstelt zich na afloop der belichting (treedt bij 4,2 °K nauwelijks op, doordat de elektronen bij die temperatuur slechts zeer weinig beweeglijk zijn).

De verzadigingswaarde μ_s waarnaar de beginpermeabiliteit μ_r daalt bij belichting, is voor een bepaald monster en een vaste temperatuur uitsluitend een functie van de belichtingsintensiteit. Uit de experimenteel bepaalde vorm van deze functie en het, eveneens experimenteel bepaalde, verloop van μ_r tijdens het herstel na afloop van de belichting (faze *III* in fig. 7) kunnen we de tijdsafhankelijkheid van de permeabiliteit bij het begin van de verlichting (faze *I*) berekenen. Er is een goede overeenstemming tussen de zo berekende kromme voor de verandering in de magnetische stijfheid $1/\mu_r$ als functie van de tijd en de experimentele gegevens (*fig. 8*).

Voor de berekening zijn de volgende veronderstellingen gemaakt:

1) De verandering van de magnetische stijfheid als gevolg van de door belichting veroorzaakte bezetting van II-plaatsen is op elk moment evenredig met het aantal bezette II-plaatsen n [8]:

$$\Delta\mu^{-1} = Cn. \quad \ldots\ldots\ldots \quad (1)$$

De grootheid n is een functie van de tijd t en de belichtingsintensiteit I. (De index bij μ laten we verder weg.)

2) Zowel tijdens de belichting als daarna treedt recombinatie der Cr^{2+}-Ga^{3+}-paren op met een snelheid die evenredig is zowel met het aantal bezette II-plaatsen als met het aantal lege I-plaatsen. Deze aantallen zijn aan elkaar gelijk en bedragen n, zodat de recombinatiesnelheid evenredig is met n^2.

3) De dissociatiesnelheid der Cr^{2+}-Ga^{3+}-paren (bezettingssnelheid der II-plaatsen) is evenredig met de belichtingsintensiteit I en met het aantal I-plaatsen dat op ieder ogenblik bezet is. Dit aantal bedraagt $n_0 - n$, waarin n_0 het aantal Ga^{3+}-ionen en daarmee ook het maximaal beschikbare aantal I-plaatsen is.

De veronderstellingen 2 en 3 resulteren in een differentiaalvergelijking voor het aantal II-plaatsen n. De vormingssnelheid is het verschil tussen de dissociatiesnelheid en de recombinatiesnelheid der Cr^{2+}-Ga^{3+}-paren:

$$dn/dt = \beta I(n_0 - n) - \alpha n^2. \quad \ldots\ldots \quad (2)$$

Hierin zijn α en β evenredigheidsconstanten. Met de randvoorwaarde $n = 0$ voor $t = 0$, d.w.z. vóór het begin der belichting zijn alle II-plaatsen leeg, luidt de oplossing van de differentiaalvergelijking (2):

$$n(t) = \frac{2n_0}{1 + z\coth(\frac{1}{2}\beta I z t)}, \quad \ldots\ldots \quad (3)$$

waarin $z^2 = 1 + 4\alpha n_0/\beta I$. Na voldoend lange tijd belichten bereikt n de stationaire waarde n_s:

$$n_s = 2n_0/(1 + z), \quad \ldots\ldots\ldots \quad (4)$$

en hiermee bereikt ook de verandering van de magnetische stijfheid een stationaire waarde, welke een functie van de belichtingsintensiteit is:

$$(\Delta\mu^{-1})_s = Cn_s. \quad \ldots\ldots\ldots\ldots \quad (5)$$

Door een juiste keuze van de evenredigheidsconstanten α/β en C blijkt het mogelijk het door (4) en (5) gegeven verband tussen $(\Delta\mu^{-1})_s$, d.i. de verzadigingswaarde van de stijfheidsverandering, en de belichtingsintensiteit aan te passen aan de experimenteel gevonden krommen. Op deze wijze vindt men numerieke waarden voor α/β en C.

Het herstel van de magnetische stijfheid na het uitschakelen van de belichting op het moment $t = 0$ vinden we uit de differentiaalvergelijking (2) met $I = 0$ en als randvoorwaarde $n = n_s$ voor $t = 0$. De oplossing luidt in dit geval:

$$\frac{1}{n(t)} = \frac{1}{n_s} + \alpha t, \quad \ldots\ldots\ldots \quad (6)$$

waaruit na deling door C resulteert:

$$\frac{1}{\Delta\mu^{-1}} = \frac{1}{Cn_s} + \frac{\alpha}{C}t.$$

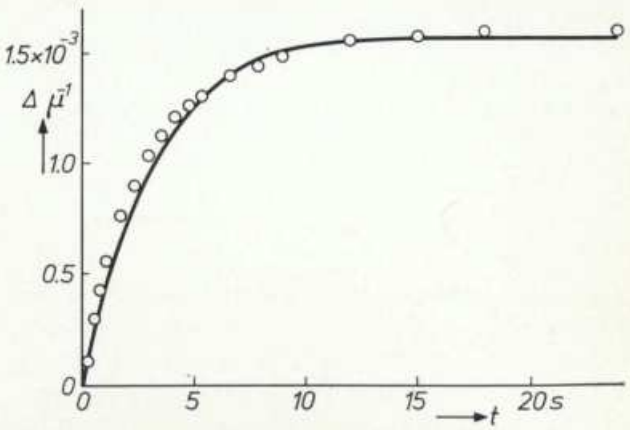


Fig. 8. De verandering van de magnetische stijfheid $\Delta\mu_r^{-1}$ van $Cd_{1-y}Ga_yCr_2Se_4$ met $y = 0{,}015$, als functie van de tijd verlopen na het begin van belichting met een gloeilamp (belichtingsintensiteit 9×10^{-5} W/cm²; preparaattemperatuur 77 °K). De cirkeltjes geven de experimentele resultaten. De getrokken lijn geeft het verwachte verloop, zoals berekend uit de betrekking (3).

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

De experimenten hebben bevestigd dat de inverse van de stijfheidsverandering na ophouden der belichting inderdaad een lineaire functie van de tijd is. De helling van de experimenteel verkregen rechte levert ons α/C en daarmee α, waarmee alle parameters bepaald zijn, zodat de wijze waarop de magnetische stijfheid na het inschakelen der belichting verloopt, berekend kan worden.

Verenigbaarheid der gegeven verklaringen

Wij hebben twee magnetische verschijnselen beschreven en daarvoor met behulp van verschillende modellen een verklaring gegeven. De vraag is nu of deze twee modellen geen aanleiding geven tot tegenstrijdigheden. Enig inzicht is hier te verkrijgen door het aantal plaatsen dat in beide gevallen voor de ferro-ionen beschikbaar is, te tellen.

Men kan de formule van yttrium-ijzergranaat schrijven als $Y_3Q_2R_3O_{12}$, waarbij Q en R de metaalionen op respectievelijk octaëdrisch en tetraëdrisch door zuurstof omringde plaatsen in het rooster zijn. Voor materiaal dat per molecuul met x atomen silicium gedoteerd is, resulteert dit in $Y_3(Fe^{3+}_{2-x}Fe^{2+}_x)(Fe^{3+}_{3-x}Si^{4+}_x)O_{12}$. We zien dat een fractie $x/3$ der tetraëderplaatsen door silicium is bezet en verder dat er per tetraëderplaats 2/3 octaëderplaatsen zijn. Voor het aantal octaëderplaatsen l dat per Si-ion voor het bijbehorende Fe^{2+}-ion beschikbaar is, geldt dan: $l = (2/3)(3/x) = 2/x$. Het anisotropie-effect is waargenomen voor $0{,}1 < x < 0{,}3$; daarbij is dus $6{,}6 < l < 20$. Voor een siliciumion is het aantal naaste, octaëdrisch omringde buurplaatsen vier en het aantal op één na naaste octaëderplaatsen acht. Bij maximaal twintig beschikbare plaatsen voor een Fe^{2+}-ion zal er dus zeker geen sprake kunnen zijn van het bestaan van II-plaatsen op grote afstand van een Si-ion, zoals we die voor de verklaring van het permeabiliteitseffect hebben gebruikt. Ook wordt aannemelijk dat voor $x > 0{,}3$ het anisotropie-effect kleiner zal worden, omdat dan rond een groot aantal Si-ionen minder dan vier plaatsen beschikbaar zijn voor het Fe^{2+}-ion.

Voor $x < 0{,}05$ — voorwaarde voor het optreden van het permeabiliteitseffect — is $l > 40$, zodat de voor dit effect noodzakelijke II-plaatsen talrijk zullen zijn. De concentratie der siliciumionen, en daarmee die der Fe^{2+}-ionen, is nu echter zo gering geworden dat het anisotropie-effect niet meer waarneembaar is.

Wij zien hieruit dat beide modellen elkaar niet uitsluiten, maar veeleer aanvullen. Bovendien heeft de telling enig inzicht gegeven in de factoren die de grens bepalen tussen de doteringsconcentratiegebieden waarbinnen beide effecten optreden.

Helaas ontbreken nog de nodige experimentele gegevens om te kunnen komen tot één enkel model waarmee alle waargenomen verschijnselen volledig te verklaren zijn.

Van de fotomagnetische verschijnselen zijn nog geen toepassingen bekend. Een praktische moeilijkheid is wel dat de effecten in de tot nu toe bekende gevallen alleen bij sterk verlaagde temperatuur optreden. Het heeft dus zin, gelijktijdig met het zoeken naar toepassingen, uit te zien naar stoffen die de beschreven effecten ook bij minder lage temperatuur vertonen [9].

Als toepassingen zijn denkbaar fotomagnetische stralingsdetectors, al dan niet integrerend, en regeling van zelfinducties langs optische weg. Verder magnetische xerografie en fotomagnetische opslag van informatie. Hiervoor moet in een homogeen gemagnetiseerde plaat granaat door belichting op de gewenste plaatsen de coërcitieve veldsterkte worden verhoogd. Legt men daarna een uitwendig veld aan van zodanige richting en grootte dat de onbelichte delen van magnetisatierichting omkeren en de belichte delen niet, dan zal het op de plaat geprojecteerde lichtpatroon omgezet worden in een patroon van afwijkende magnetisatierichting. Ook zou men in een ringengeheugen bepaalde ringetjes kunnen belichten en daardoor voorkomen dat zij bij een volgende stuurimpuls omklappen.

[8] Voor de fysische achtergronden zie: W. Lems, R. Metselaar, P. J. Rijnierse en U. Enz, Z. angew. Physik **29**, 87, 1970 (no. 1) en W. Lems, R. Metselaar, P. J. Rijnierse en U. Enz, J. appl. Phys. **41**, 1248, 1970 (no. 3).

[9] Inmiddels zijn materialen gevonden die de hier genoemde verschijnselen bij 200 °K nog vertonen. Zie: Th. Holtwijk, W. Lems, A. G. H. Verhulst en U. Enz, IEEE Trans. on Magnetics (verschijnt binnenkort).

Samenvatting. Bij temperaturen beneden 150 °K is er een invloed gevonden van licht op de magnetische eigenschappen van yttrium-ijzergranaat gedoteerd met silicium ($Y_3Fe_{5-x}Si_xO_{12}$) en van $CdCr_2Se_4$ gedoteerd met gallium ($Cd_{1-y}Ga_yCr_2Se_4$). De waargenomen effecten zijn: 1) bij hoge doteringsconcentraties ($0{,}1 < x < 0{,}3$) een verandering van de kristalanisotropie zoals die bij afkoeling in een magneetveld wordt ingevroren; 2) bij lage doteringsconcentraties ($x < 0{,}05$; $y < 0{,}015$) afnemen van de beginpermeabiliteit en toenemen van de coërcitieve veldsterkte. Deze veranderingen worden teweeggebracht door licht met golflengten korter dan 1,3 μm. De effecten zijn afhankelijk van het produkt van belichtingsintensiteit en -duur. Zij worden veroorzaakt door beweging van elektronen onder invloed van het licht. Deze beweging is equivalent met een verplaatsing van de Fe^{2+}-(resp. Cr^{2+}-) ionen. Bij lage temperatuur zijn de veranderingen blijvend, bij hogere temperaturen keert na het ophouden der belichting de uitgangstoestand terug. Berekeningen aan een model, waarin twee typen plaatsen voor de Cr^{2+}-ionen worden aangenomen, vertonen een goede overeenkomst met de experimenten. Mogelijke toepassingen van de fotomagnetische verschijnselen liggen op het gebied van informatie-opslag en -verwerking.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Een trildraadmagnetometer voor microdeeltjes

H. Zijlstra

Het vinden van steeds betere materialen voor permanente magneten lijkt op een klimpartij met hindernissen. Met een nieuwe magnetometer, waarvan de gevoeligheid uitzonderlijk groot is door toepassing van mechanische resonantie, heeft men een plateau bereikt dat een wijds uitzicht biedt: hysteresislussen van individuele microdeeltjes kan men thans gemakkelijk bepalen. Veranderingen van magnetisch moment kleiner dan 5×10^{-18} Wb m zijn gemeten. Nu reeds blijken de behaalde meetresultaten de gedachten over de magnetische processen waarbij slechts enkele domeinen zijn betrokken, duidelijk te beïnvloeden.

Onderzoek van microdeeltjes

Verbetering van poedervormige grondstoffen voor permanente magneten vereist het bepalen van hysteresislussen bij deeltjes met afmetingen tussen 0,1 en 5 μm. De kristallieten in het bekende materiaal ferroxdure en het nog nieuwe $SmCo_5$, een intermetallische verbinding van samarium en kobalt, hebben deze afmetingen [1]. Zulke microdeeltjes bezitten magnetische momenten van ongeveer 10^{-16} Wb m [2]. Bij de magnetische processen in dergelijke deeltjes zijn slechts een gering aantal domeinen (Weiss-gebieden) betrokken. De invloed van de kristalstructuur — met zijn eventuele fouten — en van de verontreinigingen op de coërcitieve veldsterkte vormt het voornaamste punt van onderzoek bij de genoemde materialen. Bij dit onderzoek vervult de nieuwe magnetometer die we hier gaan beschrijven [3], een nuttige rol. Metingen ermee hebben reeds bevestigd dat de bestaande motivering voor de keuze van korrelgrootte in de magnetische poeders, de gedachte van een kritische afmeting, niet goed bruikbaar is en vervangen dient te worden door het idee van kritische velden [4]. De resultaten bewijzen bovendien dat beschouwingen die zich beperken tot slechts één domein, weinig praktische betekenis hebben. Op de kritische velden zullen we nog terugkomen in de laatste paragraaf bij het bespreken van een meting met het nieuwe instrument.

De meeste magnetometers schieten voor het genoemde onderzoek te kort. Hun meetsignaal wordt te klein wanneer men er magnetische momenten van ongeveer 10^{-15} Wb m mee wil meten — hetgeen al voorkomt bij deeltjes met afmetingen van 100 μm. Het nieuwe instrument voldoet wél aan de eisen die het onderzoek van de magnetische poeders stelt. De gevoeligheid overtreft die van andere magnetometers circa honderd keer, zonder toeneming van storingen.

Dr. ir. H. Zijlstra, medewerker van Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven.

De nieuwe magnetometer

De nieuwe magnetometer is een simpel en gemakkelijk bruikbaar instrument, dat werkt volgens de methode van Curie (Faraday). De methode berust op de kracht die een proefdeeltje ondervindt van een inhomogeen magnetisch veld. Deze kracht is gelijk aan $m\,\mathrm{d}H/\mathrm{d}z$, het produkt van het te bepalen magnetisch moment m en de bekende gradiënt van de veldsterkte H van het inhomogene magnetische veld. Men meet het gevolg van de kracht: de verplaatsing van het deeltje in de z-richting.

De grote gevoeligheid hebben we verkregen door de verplaatsende kracht periodiek te maken, met een frequentie gelijk aan de mechanische resonantiefrequentie van een trildraad waarop het proefdeeltje bevestigd zit [5]. In plaats van een geringe uitwijking één maal (het zogenaamde statische geval) treedt een periodieke uitwijking op, die door resonantie circa honderd maal zo groot is en, derhalve, goed waarneembaar. *Fig. 1* toont de opstelling. Het te meten proefdeeltje wordt vastgelijmd [6] op het vrije uiteinde van een dunne gouddraad, die een horizontale ruststand bezit. Het andere eind van de draad zit geklemd in een steunblokje. De lengte van de draad is zo klein gekozen dat de resonantiefrequentie boven de frequentie van mechanische storingen uit de omgeving ligt. De positie

[1] K. H. J. Buschow, W. Luiten, P. A. Naastepad en F. F. Westendorp, Philips techn. T. **29**, 376, 1968.

[2] De S.I.-eenheid van magnetisch moment is de weber m; men ontmoet nog dikwijls de elektromagnetische eenheid van magnetisch moment (de erg/oersted), overeenkomend met $4\pi \times 10^{-10}$ weber m.

[3] Zie ook H. Zijlstra, A vibrating-reed magnetometer for microscopic particles, in Rev. sci. Instr. (verschijnt aug. 1970).

[4] H. Zijlstra, Coercivity and wall motion, voordracht, Second European Conference on Hard Magnetic Materials, Milaan, september 1969 (wordt gepubliceerd in IEEE Trans. on Magnetics, juni 1970).

[5] De methode voor meting van magnetische susceptibiliteit voorgesteld door Y. L. Yousef, H. Mikhail en R. K. Girgis, Rev. sci. Instr. **22**, 342, 1951, berust eveneens op resonantie.

[6] Voor details van het lijmen, zie [3].

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

van de draad kan met een micrometerschroef worden ingesteld. Doorbuiging van de draad ten gevolge van het gewicht mag men verwaarlozen. Goud is een geschikt materiaal: het laat zich gemakkelijk tot dunne draadjes trekken en bovendien ontbreken magnetische storingen doordat het slechts zwak diamagnetisch is. De in de figuur aangegeven gradiëntspoelen C_1 en C_2, met elk 350 windingen bij een uitwendige diameter van 6 mm en een inwendige van 3 mm, zijn in tegengestelde zin achter elkaar geschakeld. Midden in de 2 mm hoge luchtspleet, waar het proefdeeltje zich bevindt, is het magnetische veld van deze spoelen dus nul, terwijl er de genoemde, verticale, veldgradiënt dH/dz optreedt. De spoelen worden gevoed door een oscillator, afgestemd op de mechanische resonantiefrequentie van de gouddraad (ongeveer 35 Hz). De draad en de gradiëntspoelen zijn opgesteld tussen de polen van de elektromagneet K. Het hiervan afkomstige, verticaal gerichte en homogene, magnetische veld, dat regelbaar is, dient voor het veranderen van het magnetisch moment van het proefdeeltje.

De te onderzoeken magnetische hysteresisverschijnselen worden teweeggebracht door cyclisch variëren van de veldsterkte van K. Hierbij meet men, in afhankelijkheid van genoemde veldsterkte, de amplitude van de trilling die de gouddraad uitvoert. De trillende draad wordt van terzijde bekeken door een microscoop bij stroboscopische verlichting, die gesynchroniseerd is met de oscillator. Mits men de faze correct instelt, flitst de lamp steeds wanneer de draad maximaal uitwijkt. In het (geijkte) oculair van de microscoop verschijnt dan een stilstaand scherp beeld van het vrije eind van de draad, waarvan de verschuiving uit de ruststand de te meten amplitude is (*fig. 2*). Het stroboscopische licht maakt ook nog duidelijk of het te meten magnetisch moment naar boven of naar beneden gericht staat. In het eerste geval ziet men de draad, bijvoorbeeld, in een positie bóven de ruststand, in het tweede dus erónder.

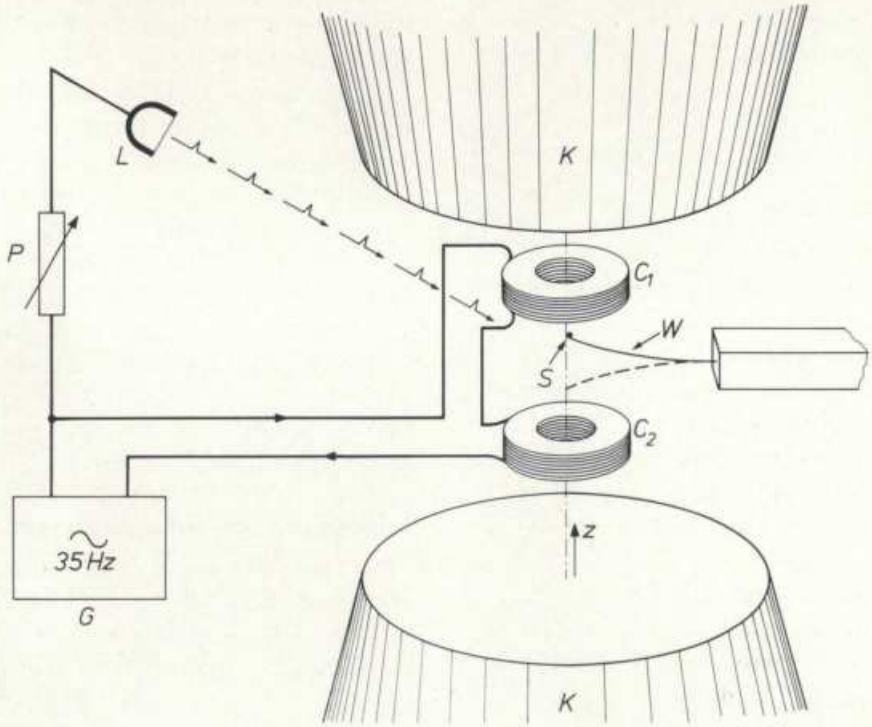


Fig. 1. Een magnetometer volgens Curie (Faraday), met verhoogde gevoeligheid. Het proefdeeltje S bevindt zich op het vrije eind van de in de z-richting (verticaal) trillende gouddraad W (lengte 20 mm, diameter 38 μm). De amplitude van de trilling bepaalt men met een meetmicroscoop (niet getekend). C_1, C_2 gradiëntspoelen. K polen van regelbare elektromagneet. L stroboscoop. P fazedraaier. G oscillator, afgestemd op de resonantiefrequentie van W.

Voor de praktijk van het meten verdient een televisiecamera die het beeld in de microscoop waarneemt, de voorkeur boven het oog. Op het monitorscherm verschijnt dan een ongeveer duizend maal vergrote draad. Amplitudes van enige microns blijken meetbaar te zijn.

De beschrijving van het instrument willen we nog aanvullen met enkele opmerkingen over het vinden van goede waarden voor de grootheden die de trilling van

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

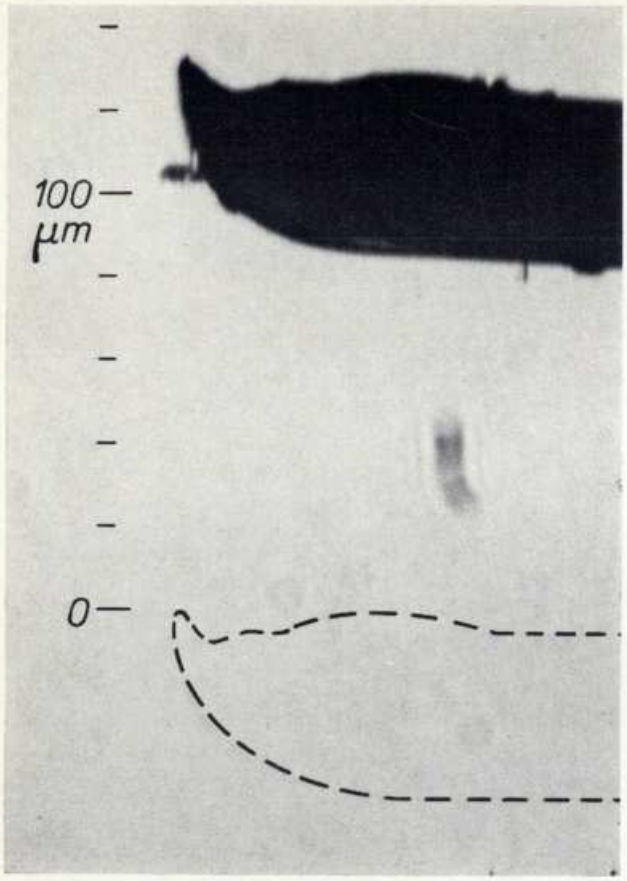


Fig. 2. Uitwijking van de trildraad ten gevolge van een magnetisch moment van ca. 10^{-16} Wb m, afkomstig van een deeltje $SmCo_5$ dat ca. 10^{-9} gram weegt; waarneming in stroboscopisch licht via een microscoop. De verhevenheid op het eind van de draad is de druppel lijm waarin zich het (niet zichtbare) proefdeeltje bevindt. De streeplijn duidt de ruststand aan. De getekende schaalverdeling stemt overeen met die van het geijkte oculair, dat voor het maken van de foto moest worden weggenomen.

de draad bepalen. Bovendien ontstaat dan inzicht in de theoretisch bereikbare gevoeligheid.

De draad geraakt in trilling (zie *fig. 3*) door de periodieke, verticaal gerichte kracht $f \sin 2\pi\nu_r t$, waarvan f de amplitude is en ν_r de frequentie. De te meten uitwijking (amplitude) a van de draad wordt

$$a = a_s \, 2\pi E/E_l.$$

In deze betrekking stelt a_s de uitwijking in het statische geval voor, die zou optreden wanneer de kracht constant en gelijk aan f was; E is de totale trillingsenergie (kinetische + potentiële energie van het trillende systeem) en E_l het energieverlies, gedurende één periode, ten gevolge van demping. De bereikte verbetering a/a_s van de gevoeligheid is gelijk aan $2\pi E/E_l$, de kwaliteitsfactor. Wanneer E_l daalt, stijgt dus de gevoeligheid. Een opstelling van het systeem in vacuüm zou vanwege de verminderde luchtdemping de voorkeur verdienen, mits men de praktische bezwaren ervan ondervangt.

Een verder onderzoek [3] van de kwaliteitsfactor en de statische uitwijking leidt tot de benaderende betrekking

$$\frac{m}{a} = C\eta \frac{d}{l} \left(\frac{\gamma}{\varrho}\right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{\mathrm{d}H}{\mathrm{d}z}\right)^{-1}.$$

In het linkerlid staat het quotiënt van het onbekende magnetisch moment m van het proefdeeltje en de uitwijking a die gemeten wordt. De constante C in het rechterlid is ongeveer gelijk aan 1/2. Men ziet hoe de viscositeit η van het omringende gas het quotiënt m/a beïnvloedt: η dient zo klein mogelijk te zijn. Bovendien is het gunstig wanneer de verhouding van diameter d en lengte l van de draad klein gekozen wordt, evenals zijn elasticiteitsmodulus γ; het soortelijk gewicht ϱ van het materiaal waaruit de draad bestaat en de veldgradiënt $\mathrm{d}H/\mathrm{d}z$, daarentegen, moeten groot zijn. Invullen van de gekozen waarden in de vermelde betrekking leert dat een amplitude van 1 μm overeenkomt met een magnetisch moment van ongeveer 10^{-17} Wb m. Zoals gezegd, stelt dit resultaat slechts een benadering voor. Een preciezer beschrijving van het gedrag van de trillende draad is slechts mogelijk door de bijbehorende (niet-lineaire) differentiaalvergelijking op te stellen en volledig op te lossen.

Metingen aan een $SmCo_5$-deeltje (10^{-9} gram)

Een voorbeeld van het magnetisch gedrag van een individueel $SmCo_5$-deeltje, waarvan de afmetingen ongeveer 5 μm bedragen en het gewicht circa 10^{-9} gram is, vindt men in *fig. 4*. De verzadigingswaarde van het magnetisch moment van dit deeltje is ongeveer 10^{-16} Wb m. Horizontaal staat uitgezet de door de hoofdmagneet K (zie fig. 1) ter plaatse van het deeltje opgewekte veldsterkte, die het gemeten magnetisch moment bepaalt. De pijlen geven de volgorde van verandering van het hoofdveld aan.

Om de fysische achtergrond van deze meetresultaten te verduidelijken zal het idee van kritische velden, reeds vermeld in de eerste paragraaf, worden toegelicht. Volgens deze opvatting [4] hangt de coërcitieve veld-

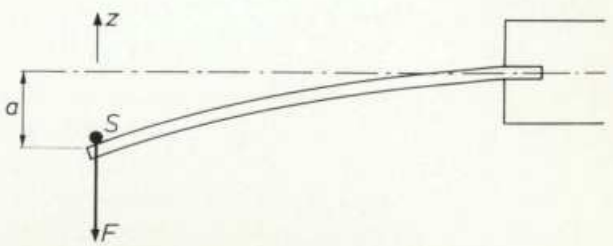


Fig. 3. De eenzijdig geklemde trildraad. Het magnetisch proefdeeltje S op het vrije eind ondervindt een periodieke kracht F in de z-richting. De amplitude a van de periodieke uitwijking is maximaal wanneer de frequentie van F gelijk is aan de mechanische resonantiefrequentie van de trildraad.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info

11/14/2023

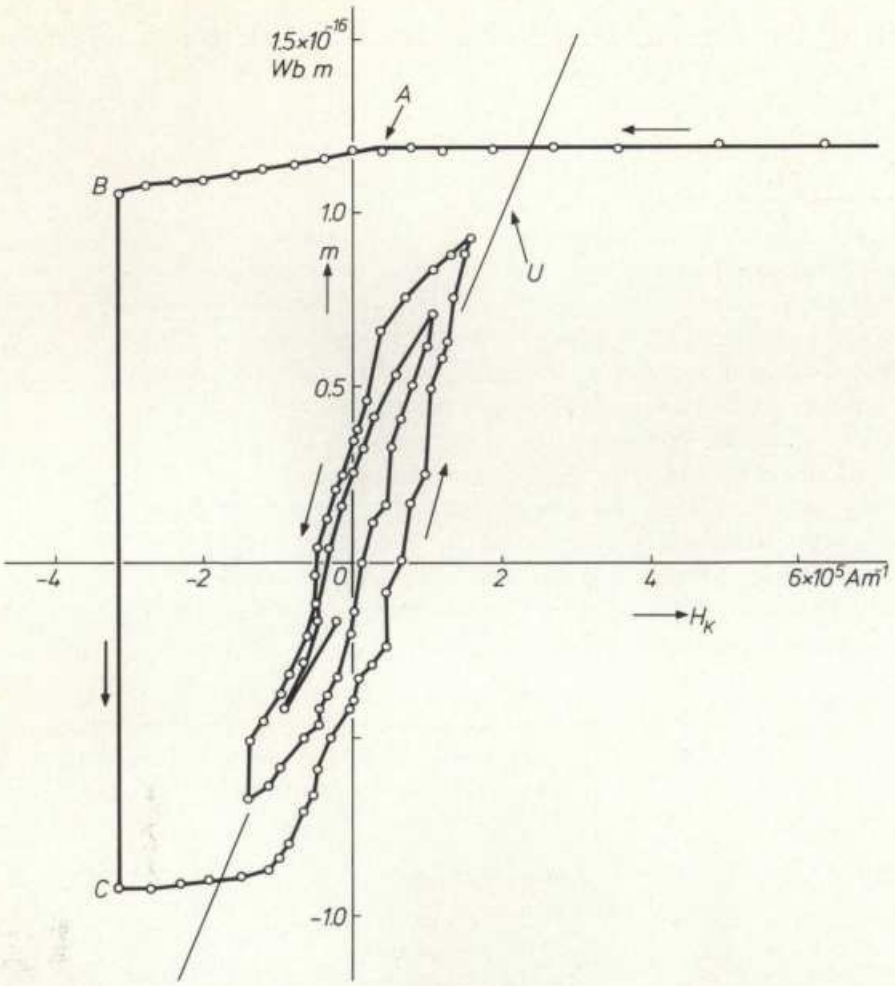


Fig. 4. Een voorbeeld van het magnetisch gedrag van één $SmCo_5$-deeltje met een diameter van ca. 5 μm en een gewicht van ca. 10^{-9} gram. Verticaal het gevonden magnetisch moment m; de horizontaal uitgezette veldsterkte H_K ter plaatse van het deeltje, afkomstig van de hoofdmagneet (K in fig. 1), is gevarieerd in de door pijlen aangegeven richting. De kleinste meetbare verandering van magnetisch moment is ongeveer 4×10^{-18} Wb m. Voor een discussie van de punten A, B, C en de lijn U zie tekst.

sterkte niet zozeer samen met de afmetingen van het deeltje, maar met drie krachten, voortkomend uit de structuur. Het zijn een kiemveldsterkte („nucleation field") voor het creëren van een domeinwand, een aan een ankerpotentiaal ontleende kracht („pinning field") die de wand ergens vasthoudt, en een voortplantingsveldsterkte („propagation field") die zo'n wand transporteert. Een grote coërcitieve veldsterkte wordt mogelijk gemaakt zowel door een grote kiemveldsterkte als door een hoge ankerpotentiaal. Welke van deze twee in een bepaald geval overweegt, volgt uit metingen aan de individuele deeltjes.

In het voorbeeld van fig. 4 ziet men bij A het creëren van een domeinwand, die eerst verankerd blijft. Bij B laat de wand los en drift naar de andere zijde van het deeltje. In C loopt de wand vast. De verplaatsing van B naar C geschiedt kennelijk zonder veel moeite: de daarvoor vereiste verandering van het door de magneet K geleverde veld is gering. De voortplantingsveldsterkte is derhalve nagenoeg nul. Uit het gevondene trekken we de conclusie dat de coërcitieve veldsterkte bij dit deeltje voornamelijk bepaald wordt door de hoge ankerpotentiaal die dicht bij het oppervlak optreedt.

Binnen het deeltje kan een wand tamelijk gemakkelijk bewegen. De lijn U in fig. 4, die het gedrag van een ferromagnetisch bolletje met vrij beweegbare wanden voorstelt, levert het bewijs. De helling van deze lijn stemt immers redelijk overeen met de helling van de kleinste lus die het deeltje heeft doorlopen.

De kleine verticale sprongen op de lussen stellen Barkhausen-sprongen voor, waarbij de wand gaat bewegen en nagenoeg gelijktijdig weer stopt. Deze kleine veranderingen van magnetisch moment, enige malen 10^{-18} Wb m, kan men met de nieuwe magnetometer goed reproduceerbaar aantonen. De gevoeligheid is dus groter dan uit de vermelde benaderende betrekking volgt.

Samenvatting. Constructie, optimalisering en prestaties van een magnetometer volgens Curie, echter met periodieke verplaatsingskracht, worden beschreven. Een proefdeeltje, gelijmd op het vrije eind van een gouden trildraad (lengte 20 mm, diameter 38 μm), bevindt zich tussen twee, in tegenfaze gevoede, gradiëntspoelen. De frequentie van de veldgradiënt is gelijk aan de resonantiefrequentie van de trildraad. Men bepaalt de amplitude van de draad met een meetmicroscoop, waarbij stroboscopisch licht het beeld doet stilstaan. Grootte en zin van het magnetisch moment volgen uit de meting. Omgevingsstoringen zijn niet merkbaar. De kleinste gemeten verandering van magnetisch moment, bij een hysteresislus van een $SmCo_5$-deeltje (gewicht ca. 10^{-9} gram), is van de orde van 10^{-18} Wb m. De metingen maken het mogelijk te onderscheiden welke kritische velden de coërcitieve veldsterkte bepalen.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info
11/14/2023

Renaissance in de keramische technologie

A. L. Stuijts

Onderstaand artikel is, behoudens kleine wijzigingen, de tekst van de rede door prof. ir. Stuijts uitgesproken bij de aanvaarding van het ambt van buitengewoon hoogleraar aan de Technische Hogeschool te Eindhoven. Sinds ongeveer 1950 heeft men in de keramische technologie met veel succes allerlei nieuwe middelen beproefd, die tot een betere beheersing van de microstructuur van keramische materialen hebben geleid. In veel mindere mate dan vroeger is het thans nodig om zich in de praktijk aan te passen aan de beschikbare materialen: men kan het materiaal afstemmen op de toepassing. Tot de nieuwe middelen waarover men thans beschikt behoren: speciale toevoegsels, het gebruik van zeer fijne poeders met een hoge sinterreactiviteit, het gebruik van materialen met een kleine afwijking van de stoechiometrische samenstelling ter introductie van roostervacatures, het gelijktijdig toepassen van hoge druk en hoge temperatuur, enz. De praktische betekenis van de nieuw verworven mogelijkheden is zo groot dat we binnenkort nog een artikel aan dit onderwerp zullen wijden, waarvoor het onderhavige artikel als inleiding kan dienen.

De keramische technologie, vroeger en nu

Vaste stoffen hebben bij de ontwikkeling van de mens een zó belangrijke rol gespeeld dat tijdperken ernaar zijn genoemd: het stenen, het bronzen en het ijzeren tijdperk. Men kan zich afvragen in welk materiaaltijdperk wij nu leven. Men heeft al eens de mogelijkheid genoemd dat wij aan de vooravond staan van het glazen tijdperk.

De beschikbaarheid van materialen heeft in vele gevallen het uiterlijk van een cultuur bepaald. Evenzeer geldt dit voor de belangrijke technische ontwikkelingen van de laatste eeuw. De groei van de spoorwegen, en later ook van het autoverkeer, was sterk gekoppeld aan de produktie van ijzer; de namen chemins de fer of Eisenbahnen drukken dit nog fraai uit. De vliegtuigindustrie kon zich pas goed gaan ontwikkelen door het beschikbaar komen van aluminiumlegeringen. De gloeilamp kwam als verlichtingsbron pas echt in algemeen gebruik na het toepassen van wolfraam als gloeidraadmateriaal.

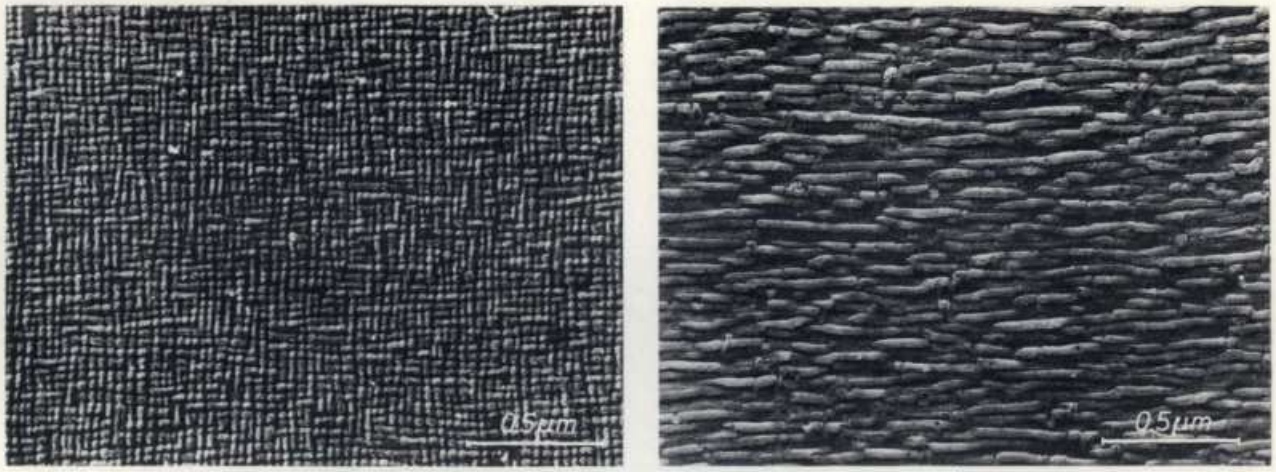
Uit de genoemde voorbeelden kan men concluderen dat metalen een overwegende invloed hebben gehad op de belangrijke technische ontwikkelingen. Omstreeks 1950 is er een nieuw tijdperk in de materiaalkunde ontstaan, waarin vele nieuwe materialen zijn ontwikkeld door uit te gaan van wetenschappelijke principes. Tot omstreeks 1950 werden de legeringen met speciale eigenschappen, zoals zachte en harde magnetische legeringen, hittevaste legeringen, slijtvaste materialen, vrijwel uitsluitend verkregen door empirisch onderzoek. De fabrikant van wolfraamdraden voor gloeilampen van rond 1950 beschikte weliswaar over een hoge graad van vakmanschap, maar ook de klokkengieter in het oude China was al een redelijk goed vakman. Generaliserend meen ik te mogen zeggen dat er wetenschappelijk gezien ook niet zoveel verschil is. Dit blijkt bij voorbeeld als men de kleine toevoeging van een verontreiniging aan het wolfraam beschouwt die ervoor dient om draadbreuk door uitzakken van kristallen te verhinderen. Dit is op volkomen toevallige wijze ontdekt [1], en draadbreuk wordt op even mystieke wijze beheerst als de fraaie klank van de klok van de Chinese klokkengieter. Immers, in het gedicht dat in het oude China blijkbaar als fabrikagerecept diende, werd deze opgeroepen door het rampzalige offer van zijn beeldschone dochter.

Niettemin is er in de periode vóór 1950 zeer veel wetenschappelijk werk verricht op metaalkundig gebied dat de basis is geweest voor belangrijke recente materiaalontwikkelingen. Misschien moet men zeggen dat de praktische metaalkunde een te vergaande mate van technische ontwikkeling had bereikt om nog direkt toegankelijk te zijn voor fysisch onderzoek. Daardoor is het ook pas enige jaren geleden mogelijk geworden om de magnetische structuur van een complexe legering als „Ticonal" te begrijpen (*fig. 1*).

Prof. ir. A. L. Stuijts, medewerker van Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven en buitengewoon hoogleraar in de scheikundige technologie aan de Technische Hogeschool, Eindhoven.

Digitized in Heiloo the Netherlands
Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023



a *b*

Fig. 1. De submicroscopische structuur van een materiaal kan van grote invloed zijn op zijn fysische eigenschappen. De foto's hierboven tonen de oriëntatie van de kristallieten waaruit de legering „Ticonal" bestaat. De naaldjes zijn tijdens hun precipitatie gericht in een magnetisch veld. Dank zij hun fraaie, regelmatige rangschikking is een hoge waarde van $(BH)_{max}$ verkregen (11×10^6 gauss oersted). *a*) Het materiaal gezien in de lengterichting van de naaldjes, *b*) in een vlak evenwijdig aan de naaldjes.

In de moderne materiaalontwikkelingen heeft verder de vastestoffysica een essentiële rol gespeeld. Deze is eerst na de tweede wereldoorlog tot volle bloei gekomen, en heeft onder andere geleid tot de ontwikkeling van brandstoffen voor kernenergie, van materialen met speciale ferromagnetische en ferro-elektrische eigenschappen, en van belangrijke halfgeleidende materialen [2]. Vooral bekend is de toepassing van deze laatste groep voor de vervaardiging van transistors. De ontwikkeling in de vastestoffysica is tot stand gekomen door een nauwe samenwerking tussen fysici en chemici, waarmee het mogelijk is geworden om vele intrinsieke eigenschappen van vaste stoffen, aan de hand van een goed atomair beeld, te begrijpen.

Nu worden de potentiële eigenschappen van een materiaal bepaald door zijn chemische samenstelling en zijn kristalstructuur. Dit wil zeggen: of een materiaal halfgeleidend, magnetisch, stabiel bij hoge temperaturen of doorzichtig is, hangt in de eerste plaats af van de chemische samenstelling en de kristalstructuur van het metaal, de legering of de verbinding.

Reeds in het begin van de jaren twintig was het de metaalkundigen duidelijk geworden dat de werkelijk belangrijke technische eigenschappen vooral bepaald worden door de structuur van het materiaal. Hiermee wordt niet de kristalstructuur bedoeld, maar de aggregatietoestand en de verdeling van de fazen waaruit het materiaal is samengesteld. Vaak wordt hiervoor de term *microstructuur* gebruikt. De studie van de microstructuur van metalen en legeringen, en van het verband met hun samenstelling en hun fysische en mechanische eigenschappen, wordt metallografie genoemd.

Deze conceptie, dat de belangrijke technische eigenschappen van materialen ook in hoge mate afhangen van de microstructuur, geldt algemeen voor de moderne materialen. Het klinkt als een tautologie bij composietmaterialen.

Aanpassing van materialen aan de eisen in de praktijk

Uitgaande van deze gedachte wordt het in principe mogelijk om materialen te synthetiseren die nauwkeurig voldoen aan de eisen die de toepassing stelt, mits aan twee voorwaarden is voldaan. In de eerste plaats is het nodig dat het verband tussen de gewenste eigenschappen en de daarvoor vereiste microstructuur kwantitatief geformuleerd kan worden. En in de tweede plaats moet de gewenste structuur inderdaad reproduceerbaar en economisch te realiseren zijn.

Zowel de fysica van de vaste stof, die het verband legt tussen microstructuur en eigenschappen, als de fysische metaalkunde, die de studie van het ontstaan van de microstructuren omvat, hebben de basis gelegd voor de ontwikkelingen in de moderne materiaaltechnologie. Er is hierbij, vooral sinds 1950, een bijzonder grote invloed geweest van vraagstellingen in de verschillende gebieden van technische ontwikkeling op de materiaalontwikkeling zelf. Het meest verrassende is daarbij geweest dat, door het genoemde wetenschappelijke onderzoek, in vele gevallen voldoende basiskennis aanwezig bleek te zijn om met succes aan de vraagstelling te kunnen voldoen. De mogelijkheid om materialen

[1] Zie b.v. J. L. Meijering en G. D. Rieck, Philips techn. T. **19**, 109, 1957.
[2] Zie b.v. Scientific American **217**, no. 3, sept. 1967.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

„naar maat" te kunnen leveren betekent natuurlijk een belangrijke vooruitgang. Voor de gebruiker, de elektronicus, de werktuigbouwer, de vliegtuigbouwer, de kernfysicus, is dit een ideale situatie: het is dan niet meer nodig zich in de uitwerking van het systeem aan te passen aan de beschikbare materialen. Integendeel, nu kunnen meer en meer „custom-tailored" materialen worden verkregen, die aan de uit het technische probleem voortvloeiende eisen voldoen.

Voor de praktijk heeft deze ontwikkeling uiteraard grote consequenties. Industrieën die de essentiële rol van het wetenschappelijk materiaalonderzoek tijdig hebben ingezien, hebben daardoor een grote voorsprong gekregen. In de lucht- en de ruimtevaart is het normaal geworden om het materiaalonderzoek en de materiaalontwikkeling als een essentieel onderdeel van een nieuw project te beschouwen. De opbouw van de instituten voor kernenergie getuigt van dezelfde visie. In vele landen is daar echter zóveel mankracht aan ten koste gelegd, dat men er nu een overcapaciteit aan research heeft. Men probeert er nu de verkregen kennis op het gebied van het beheersen van materiaaleigenschappen op ruime schaal toe te passen in de nationale industrie, buiten het specifieke gebied van de kernenergie.

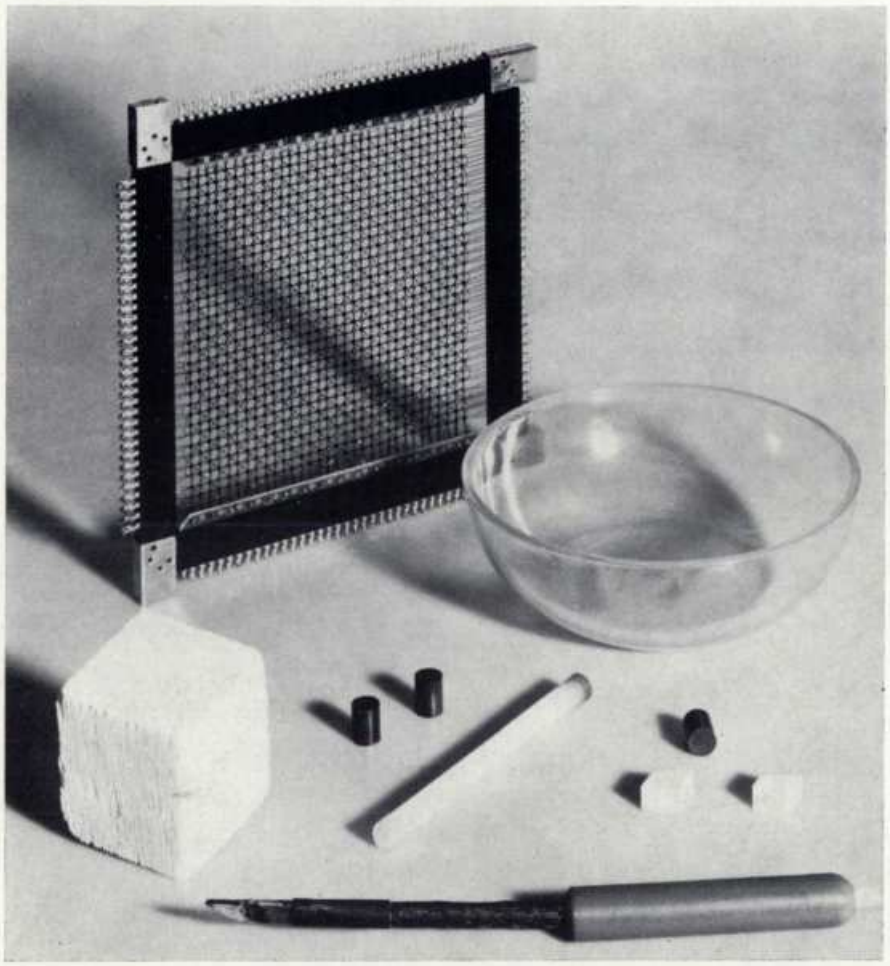


Fig. 2. Enige moderne keramische produkten. Op de achtergrond ziet men een geheugenmatje met ferrietringetjes. De witte blokjes rechts zijn gemaakt van fijnkristallijn, dichtgesinterd Al_2O_3; het materiaal is zo sterk, slijtvast en hard dat de blokjes als beitel gebruikt kunnen worden. De kleine zwarte cilinders bestaan uit uraniumdioxide, brandstof voor de opwekking van kernenergie. Het pijpje is vervaardigd van grofkristallijn, porievrij Al_2O_3 (zo weinig mogelijk kristalgrenzen bevattend); het is bestand tegen hoge temperaturen, chemische aantasting bij die temperaturen, en is tevens (dank zij het relatief kleine aantal kristalgrenzen) doorschijnend voor zichtbaar licht. Dit pijpje wordt gebruikt als omhulling van hogedruknatriumlampen. De schaal rechts en de grote poreuze kubus links zijn gemaakt van glaskeramiek; de uitzettingscoëfficiënt is uiterst klein, en dit maakt het materiaal bestand tegen temperaturen tot ongeveer 700 °C; het poreuze materiaal is b.v. geschikt voor warmtewisselaars. Op de voorgrond ten slotte een soldeerbout (laboratoriumuitvoering) waarvan het verhittingselement bestaat uit keramisch barium-loodtitanaat met een La-dotering [3].

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Nieuwe keramische materialen

De keramische materialen spelen in de bedoelde materiaalrenaissance mede een essentiële rol. Voor de meeste mensen is keramiek nog synoniem met aardewerk of porselein, produkten met een zeer oude geschiedenis. Keramiek in deze traditionele zin is nog steeds het produkt van een belangrijke tak van industrie. Ook Nederland heeft op dit gebied in vele opzichten een goede geschiedenis. Het leverde, en levert nog, vele produkten die een wereldnaam hebben. De thans bloeiende Association Européenne de Céramique is door Van Thiel de Vries, vlak na de tweede wereldoorlog, opgericht. De Nederlandse Keramische Vereniging heeft, te zamen met haar Engelse zusterorganisatie, de start gegeven voor de Europese bijeenkomsten over de wetenschappelijke achtergronden van de keramiek.

Maar vandaag houdt het begrip keramiek méér in dan de traditionele keramische materialen, die alle klei als grondstof bevatten. De moderne keramische materialen betreffen een zeer groot gebied van anorganische verbindingen en mengverbindingen, waarbij de oxiden de boventoon voeren. Ook grafiet wordt erbij gerekend, evenals een aantal carbiden, nitriden, boriden, siliciden en andere verbindingen. Er wordt steeds méér gebruik gemaakt van hun unieke eigenschappen. Zij zijn zeer hard, hebben een grote weerstand tegen slijtage of erosie, zij hebben een grote sterkte bij hoge temperaturen, zijn chemisch inert en hebben vaak opmerkelijke elektrische en magnetische eigenschappen. Het is een zeer heterogene groep materialen, met een zeer heterogeen toepassingsgebied (*fig. 2*). De American Ceramic Society heeft serieus getracht een andere benaming te vinden voor keramiek. Het beste dat zij kon vinden was „inorganic, nonmetallic materials"; maar de aanwezigheid van twee ontkenningen in één benaming leek niet zo gunstig. En dus spreken wij van keramische materialen die met de traditionele keramische materialen een groot aantal kenmerken gemeen hebben.

De meeste keramische produkten worden uit poeders vervaardigd, en de poedertechnologie is altijd het werkgebied van de keramicus geweest. Door het brosse karakter van keramische materialen is slijpen de enige mogelijkheid om de gesinterde produkten te bewerken,

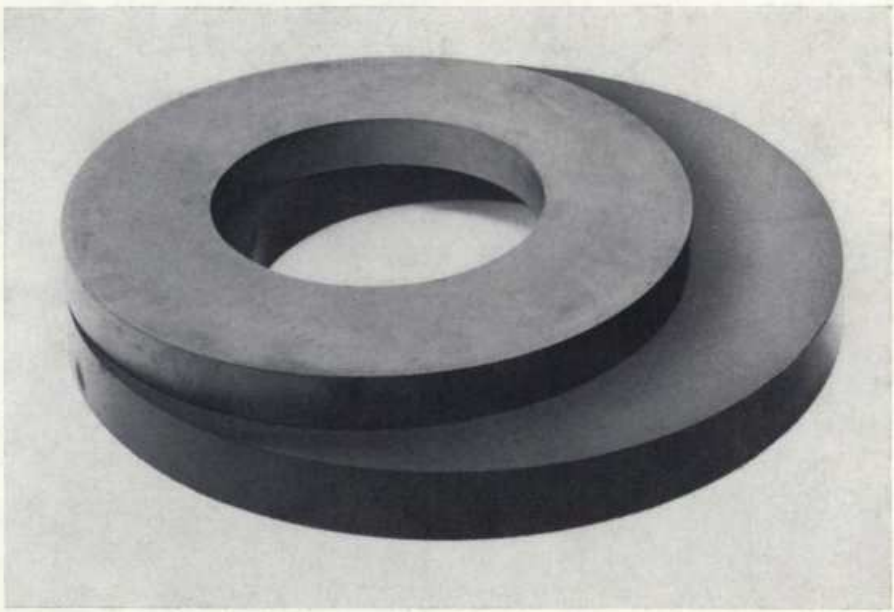


Fig. 3. Ter demonstratie van de krimp ten gevolge van sinteren. Men ziet op de foto twee ferrietringen voor deeltjesversnellers. De onderste ring is geperst, maar heeft nog geen sinterproces ondergaan; de bovenste ring, die aanvankelijk dezelfde diameter had, is gesinterd. De buitendiameter van de onderste ring is 55 cm, die van de bovenste ring 44 cm.

hetgeen een kostbare zaak is. Toepassing van het keramisch proces heeft evenwel het grote voordeel dat bij de produktie vormgeving mogelijk is. Uitgaande van poedervormige grondstoffen wordt een produkt gevormd dat ca. 50% poriën bevat en nog niet erg sterk is. Door het produkt bij hoge temperatuur te verhitten, neemt het porievolume af tot minder dan 10% en neemt de sterkte aanzienlijk toe. Bij de vormgeving moet rekening worden gehouden met de krimp, die tijdens het sinterproces optreedt (*fig. 3*).

Een typerend verschil tussen de moderne en de traditionele keramiek is misschien wel het feit dat de esthe-

[3] Zie b.v. E. Andrich, Philips techn. T. **30**, 174, 1969 (no. 6/7).

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

tische maatstaf als belangrijkste norm vervangen is door het begrip tolerantie.

In de traditionele keramische produkten is de vorming van een smeltfaze vrijwel steeds essentieel om het sinterproces van de hoogsmeltende hoofdfaze bij redelijk lage temperaturen mogelijk te maken. In de nieuwe keramische produkten, die dus als een klasse van materialen beschouwd kunnen worden en niet zozeer als de produkten van een speciale tak van de industrie, worden smeltfazen in het algemeen als ongunstig beschouwd om tot een beheersing van de fysische eigenschappen te komen.

De eerste groep van moderne keramische materialen wordt gevormd door de ferrieten, materialen afgeleid van het mineraal magnetiet. De combinatie van goede magnetische en elektrische eigenschappen maakte het mogelijk deze ferrieten bij hoge frequenties te gaan toepassen, waar met metallische magnetische materialen problemen ontstaan. In de ontwikkeling van deze materialen hebben vele onderzoekers in het Philips Natuurkundig Laboratorium een groot aandeel gehad [4]. Bovendien is het een fraai voorbeeld van samenspel tussen vastestoffysici en chemici.

Als tweede groep kwamen de materialen met een hoge diëlektrische constante, waarvan het bariumtitanaat een typisch voorbeeld is.

Een derde groep zijn de kernsplijtstoffen. De ontwikkeling van de kernenergie stelt specifieke eisen voor nauwkeurige beheersing van eigenschappen en samenstelling van materialen, zoals hoogsmeltende uraniumverbindingen, berylliumoxide, en ook grafiet. Het uraniumdioxide is onbetwistbaar de kernenergiebrandstof van nu en voor de naaste toekomst.

Voor de elektronische industrie, speciaal voor de ontwikkeling van computers, voor de lucht- en ruimtevaart, voor de optische industrie, maar ook voor de meer alledaagse gebieden, zoals de serviesgoedindustrie, is er in de laatste tien jaren een enorme behoefte gekomen aan kennis van het gedrag en het fabricageproces van een groot aantal anorganische, niet-metallische materialen. In het bijzonder komen hierbij naar voren de zuivere oxiden en een aantal speciale glazen [5].

De microstructuur

Het is nog steeds gebruikelijk polykristallijne materialen, verkregen met een keramisch proces, toe te passen, ook al komt de synthese van monokristallen tevens in aanmerking. De synthese van monokristallen is echter slechts in enkele gevallen industrieel aantrekkelijk. Vaak zijn zeer ingewikkelde samenstellingen nodig om precies de gewenste eigenschappen te verkrijgen. Een keramisch proces is dan in principe veel eenvoudiger, en ook economischer, om voldoend homogene produkten op grote schaal te produceren.

In vele gevallen is de toepassing van een keramisch proces ook nodig omdat bij een smeltproces, door het hoge smeltpunt van de verbindingen, problemen ontstaan door ontledingsreacties.

De keuze van een keramisch proces betekent het introduceren van een aantal microstructuurparameters. De belangrijkste elementen van de microstructuur zijn: de grootte van de samenstellende kristallieten, hun grootteverdeling, de aanwezigheid van grenzen tussen de kristallieten, de mogelijkheid van kristallografische voorkeursoriëntaties van de kristallen, zoals in het permanent magnetische bariumhexaferriet $BaFe_{12}O_{19}$ (*fig. 4*), en verder de aanwezigheid van een zekere restporositeit.

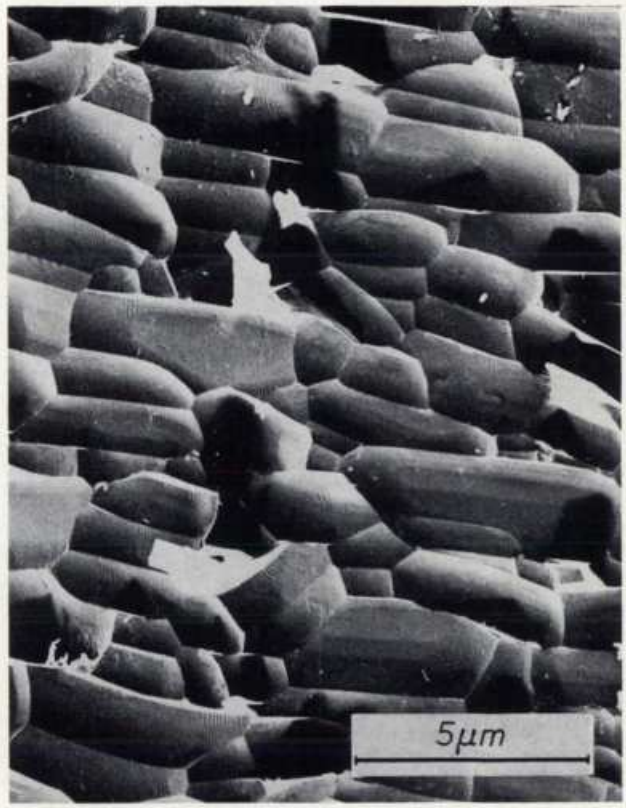


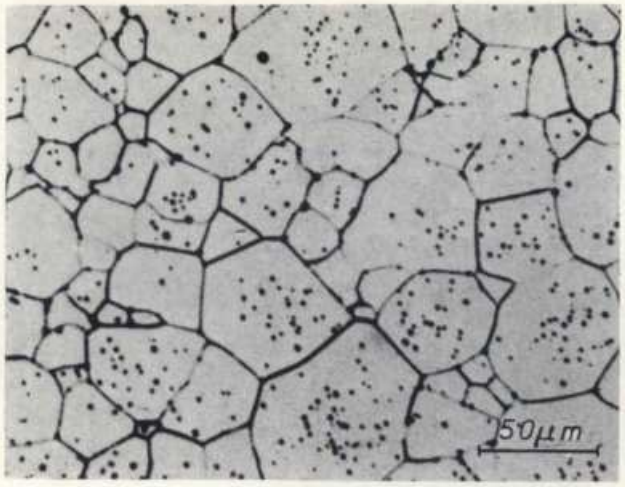
Fig. 4. In de richting van de c-as georiënteerde kristallieten van bariumhexaferriet. De oriëntatie is verkregen door een suspensie van fingemalen poederdeeltjes in een magneetveld te brengen, te filtreren en vervolgens samen te persen. De waarde van $(BH)_{max}$ is ruim 4×10^6 gauss oersted.

De porositeit kan van velerlei aard zijn. De poriën kunnen zéér klein zijn ten opzichte van de kristallieten, maar ook relatief groot. De poriën kunnen uitsluitend op korrelgrenzen aanwezig zijn, of geheel binnen de kristallieten (*fig. 5*).

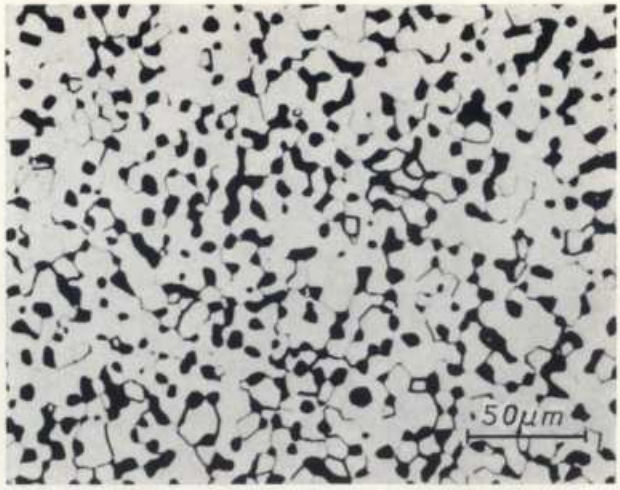
Een van de meest eenvoudige voorbeelden van de beïnvloeding van een fysische eigenschap door de microstructuur is de verstrooiing van lichtstralen door poriën. In aluminiumoxide, dat een relatief hoge brekingsindex heeft, neemt de lichtdoorlating af tot 0,01 %

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info
11/14/2023



a



b

Fig. 5. *a*) Poriën in kristallieten in Ni-Zn-ferriet. *b*) Poriën aan de kristallietgrenzen in Mn-Zn-ferriet.

bij een restporositeit van 3%. Zelfs bij 0,3% porositeit is de lichtdoorlating nog maar 10% van die van een volledig dicht materiaal.

In hoeverre de verschillende elementen van de microstructuur van een keramisch materiaal de fysische en mechanische eigenschappen beïnvloeden is een punt van onderzoek van de materiaalwetenschappen [6]. Soms is het verband zeer complex of experimenteel moeilijk toegankelijk. Zeer interessant zijn die moderne keramische materialen waar de keuze van de microstructuur essentieel is om een gewenste fysische eigenschap te bereiken. Bij voorbeeld de noodzaak van veel korrelgrenzen, of een textuur van de kristaloriëntaties.

De beheersing van de microstructuur

Ik wil thans enige basisaspecten van het sinterproces beschouwen die de microstructuur van keramische materialen bepalen. De microstructuur komt tot stand tijdens het sinterproces van een stapeling van kleine poederdeeltjes, al dan niet in een bepaalde vorm samengeperst. Het vrije oppervlak van een stof vertegenwoordigt een extra hoeveelheid energie, de oppervlakenergie. Het verschil in oppervlakenergie tussen een poeder en een monokristal levert de drijvende kracht voor een aantal thermisch geactiveerde processen, waarvan sinteren en korrelgroei de belangrijkste zijn.

Door het sinterproces kunnen de poederdeeltjes in een geperst produkt samengroeien en worden de open ruimten, de poriën, met materiaal gevuld. Daardoor vertoont het produkt een macroscopische krimp. De hoeveelheid energie die voor het sinterproces beschikbaar is, wordt bepaald door de oppervlakte van het poeder. Tenminste in hoofdzaak. Omdat deze oppervlakenergie slechts gering is, niet meer dan ca. 1 calorie per gramatoom, betekent dit dat een voldoend hoge *sinterreactiviteit* slechts bereikt wordt bij voldoend kleine deeltjes. In het algemeen ligt de gewenste deeltjesgrootte beneden 1 micron.

Deze eerste voorwaarde stelt aan de technische uitvoering van het proces direct al grote eisen, omdat het hanteren van deze fijne poeders in de praktijk grote moeilijkheden oplevert. Bij het sinterproces moeten de holten tussen de poederdeeltjes, de poriën, met materiaal gevuld worden om stevige en dichte produkten te krijgen. Dit betekent dat voor een goed verloop van het sinteren de pakking van de deeltjes, door verdichting bij het vormgevingsproces, zodanig moet worden dat een produkt met zo homogeen mogelijk verdeelde, kleine poriën ontstaat. De slechte loopeigenschappen van fijne poeders compliceren het vormgevingsproces in niet geringe mate.

Om de poriën met materiaal te kunnen vullen, is materiaaltransport nodig. In zijn eenvoudigste vorm kan het sinterproces vergeleken worden met het samenvloeien van vloeistofdruppels die met elkaar in contact gebracht worden. Bij vloeistofdruppels is dit proces goed te begrijpen, omdat de vloeistofstroming onder invloed van de oppervlakspanning tot stand komt. De enige weerstand voor dit materiaaltransport is de viscositeit van de vloeistof. Maar hoe is dit in een samenstel van poederdeeltjes?

In zijn oorspronkelijke betekenis is het verschijnsel

[4] Zie b.v. J. Smit en H. P. J. Wijn, Ferrites, Philips Technical Library, Eindhoven 1959.
[5] Zie b.v. G. Bayer, Oxyde als Werkstoffe der modernen Technik, Neue Zürcher Zeitung 27 jan. 1970, Fernausgabe no. 26, blz. 17-20 en 25.
[6] Dit onderwerp wordt uitvoerig besproken in een artikel van G. H. Jonker en A. L. Stuijts dat binnenkort in dit tijdschrift zal verschijnen.

Digitized in Heiloo the Netherlands
Not for sale!

www.freeservicemanuals.info
11/14/2023

sinteren steeds in samenhang gebracht met het optreden van vloeibare fazen bij verhitten, waardoor het geheel van de poedermassa verstevigd werd. De naam sinteren is hier ook van afgeleid. Het is echter gebleken dat, alhoewel hier vloeibare fazen optreden, het verdichtingsproces niet door macroscopische vloeistofstromingen veroorzaakt wordt. Het proces blijkt eerder te maken te hebben met het oplossen van de vaste faze in deze vloeistoffaze, en weer precipiteren. Een belangrijk probleem blijft dan vast te stellen hoe het materiaaltransport plaatsvindt in de systemen waar géén vloeibare fazen gevormd worden, met name dus de systemen die kenmerkend zijn voor de moderne keramische produkten.

Na vele jaren van fenomenologische studies is in 1945 door de Russische onderzoeker Frenkel de basis gelegd voor een wetenschappelijke benadering van het sinteren van vaste stoffen [7]. Hij gaf een theorie van de vorming en de groei van het contactoppervlak tussen twee bolvormige deeltjes, onder invloed van de oppervlakspanning, voor een mechanisme van viskeuze vloei. Een jaar later gaf Pines een uitbreiding aan deze theorie met een analyse van de concentraties van puntfouten in vaste stoffen met verschillend gekromde oppervlakken. In de daarop volgende jaren is er zeer veel vruchtbaar theoretisch en experimenteel werk verricht over de mechanismen die het materiaaltransport bij het sinteren bepalen. Dit werk, begonnen voor metaalpoeders door Kuczynski en gevolgd door vele fraaie onderzoekingen van andere Amerikaanse onderzoekers, zoals Kingery en medewerkers, is gebaseerd op modelexperimenten en uitgevoerd voor verschillende groepen van materialen: metalen, oxiden, glas, en ionogene verbindingen zoals natriumchloride. Hierdoor zijn de basismechanismen voor het materiaaltransport goed bekend geworden.

Uit deze onderzoekingen is ook gebleken dat het voornaamste mechanisme dat de krimp van kristallijne materialen bij het sinteren verklaren kan, berust op diffusie van de componenten van de verbinding door het inwendige van het materiaal. De mogelijkheid dat sinteren bepaald wordt door volumediffusie, en dat dus puntfouten in het rooster belangrijk zijn, werd wel gezien, maar de juiste interpretatie ervan heeft nog betrekkelijk lang op zich laten wachten. Het was namelijk wél duidelijk waar de materiestroom naar toe moest, maar niet waar deze vandaan kwam. De veronderstelling dat de materie van het buitenoppervlak van het voorwerp naar binnen wordt getransporteerd, bleek niet houdbaar. Het sinteren zou dan trager moeten verlopen dan waargenomen wordt, en bovendien wordt er geen afhankelijkheid van de sintersnelheid van de grootte van het voorwerp gevonden.

Nu was in diezelfde periode de theorie van Nabarro-Herring bekend geworden. Deze theorie geeft een verklaring van de deformatie van een polykristallijn metaal, bij verhoogde temperatuur, onder invloed van een uitwendige druk. Door deze zg. microkruip ontstaan er diffusiestromen in de kristallen, waarbij materiaal wordt getransporteerd van korrelgrenzen die onder druk staan, naar andere die onder trek staan (*fig. 6*).

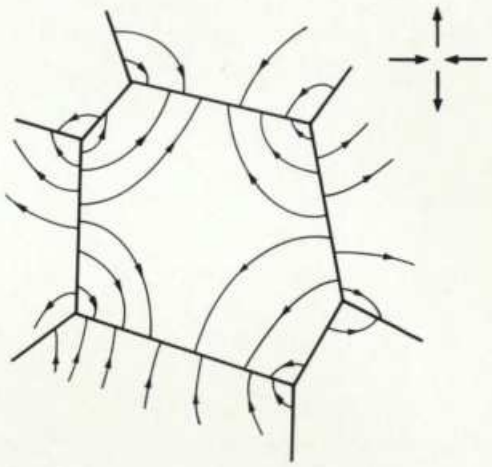


Fig. 6. De diffusiestroom in een polykristallijn materiaal, waarbij transport plaatsvindt van kristalgrenzen die onder druk staan naar kristalgrenzen die onder trek staan. (Ontleend aan C. Herring, J. appl. Phys. **21**, 437, 1950.)

Deze korrelgrenzen, de grensvlakken tussen naburige kristallieten, spelen in het verloop van het proces een essentiële rol. Een kleine korrelgrootte is zeer gunstig voor dit mechanisme.

Met deze theorie werd het mogelijk de krimp bij het sinteren van kristallijne stoffen te begrijpen. Het is de verdienste van Burke geweest om een duidelijk verband te leggen tussen het gedrag van de korrelgrenzen tijdens het sinterproces en het sinterresultaat. Bij de temperaturen waarbij het sinterproces wordt uitgevoerd, kan namelijk ook korrelgroei gaan optreden, waarvoor de grensvlakenergie tussen naburige kristallieten de drijvende kracht levert. Door korrelgroei moet de diffusie over grotere afstanden gaan plaatsvinden.

Hoewel normale groeiprocessen, ook korrelvergroving, steeds zó verlopen dat de grote groeien ten koste van de kleine, blijven die processen op beheerste wijze verlopen zolang de groeikansen voor alle kristallieten ongeveer gelijk zijn.

Uit microscopische waarnemingen concludeerde Burke dat tijdens het sinterproces een bepaalde vorm van korrelgroei kan optreden die fataal is voor een verdere verdichting van het materiaal. Het blijkt dat soms enkele kristallen, door oorzaken die nog niet geheel duidelijk zijn, vrij plotseling kunnen uitgroeien tot betrekkelijk grote afmetingen. Doordat ze tijdens hun snelle groei de poriën in het kristal insluiten, wordt het belangrijke Nabarro-Herring-mechanisme onwerkzaam.

Digitized in Heiloo the Netherlands
Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Het hier bedoelde verschijnsel, waarbij enkele kristallen uitgroeien tot afmetingen die veel groter zijn dan de kristallen in de matrix, treedt zeer vaak op in kristallijne materialen en heeft in de literatuur verschillende namen gekregen. Eén van de meest karakteristieke namen is wel die welke aansluit bij zijn onbeheerste karakter, namelijk kannibalistische groei (*fig. 7*).

Er zijn enkele uitzonderingsgevallen waar deze vorm van korrelgroei gewenst is. De inzichten van Burke over deze processen hebben echter in het algemeen geleid tot de stelling dat voor een goed verloop van het sinterproces het beheersen van korrelgroei essentieel is. Op grond van deze inzichten slaagde Coble erin aluminiumoxide volledig dicht te sinteren door een kleine toevoeging van magnesiumoxide. Dit betekende een doorbraak in de praktijk van het sinteren.

Het belangrijke technische resultaat van het werk van Coble was de mogelijkheid om het reeds lang bekende aluminiumoxide nu te gaan gebruiken als lampomhulling voor hogedruk-natriumlampen. Hierbij kan gebruik gemaakt worden van het hoge smeltpunt, de grote weerstand tegen chemische aantasting en de redelijk grote sterkte bij hoge temperaturen. Door het materiaal geheel porievrij te sinteren kan het doorschijnend gemaakt worden voor zichtbaar licht. Lampen met dit doorschijnende aluminiumoxide als omhulling geven een zeer fraai wit licht en een hoog lichtrendement. Het is typerend voor de verdere ontwikkeling van het sinteren van velerlei keramische produkten geworden dat men de beheersing van het proces is gaan uitdrukken in de transparantie van het verkregen produkt. In deze gevallen heeft het wetenschappelijk onderzoek dus in letterlijke zin geleid tot doorzicht!

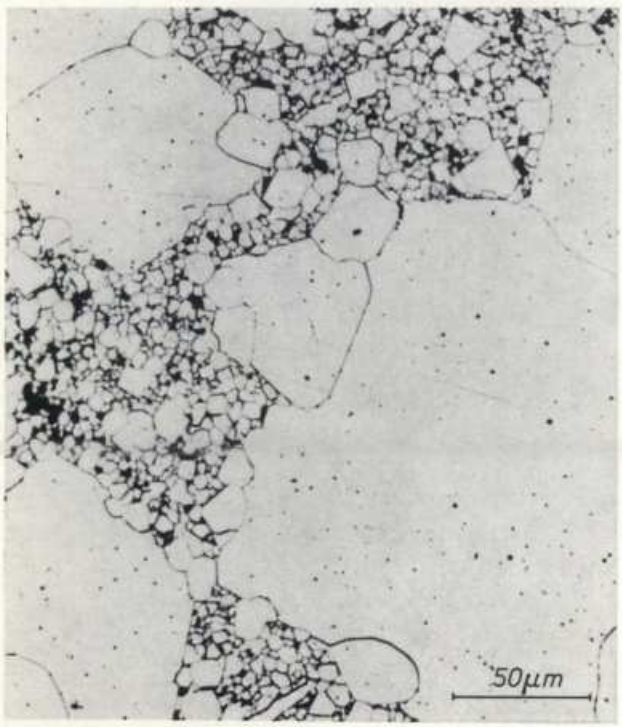


Fig. 7. Een voorbeeld van „kannibalistische" korrelgroei in Ni-Zn-ferriet.

Er is uiteraard hierna in de keramische wereld een rage ontstaan om het effect van toevoegingen op het sinter- en korrelgroeigedrag te gaan bestuderen. In de meeste gevallen met een negatief resultaat, soms niet toepasbaar door de aanwezige tweede faze. Overigens hadden eigen resultaten met het dichtsinteren van magnetische spinellen al laten zien dat er andere mogelijkheden waren om tot beheersing van sinterprocessen te komen [8]. Omdat deze materialen ondoorzichtig zijn, althans voor licht in het zichtbare deel van het spectrum, kon dit resultaat niet op de gebruikelijke wijze in de sinterwereld worden gepresenteerd in de standaardterm van transparantie. Naast dit geval zijn er intussen vele andere voorbeelden bekend geworden waar dichtsinteren mogelijk is geweest zonder dat er een toevoeging nodig was.

Waarschijnlijk moeten deze resultaten als volgt geïnterpreteerd worden. Sinteren en korrelgroei zijn twee processen die tegelijkertijd optreden, waarbij door korrelgroei de verdichting gehinderd kan worden. Voor een goed sinterresultaat moeten de omstandigheden daarom zó gekozen worden dat de voorwaarden voor een snel verloop van het sinterproces aanwezig zijn. In de eerste plaats dienen zeer fijne poeders, met een hoge sinterreactiviteit, gebruikt te worden. Vervolgens moet het geperste produkt zo homogeen mogelijk zijn, om geen problemen op te roepen door lokale variaties in de sintersnelheid. Tenslotte is het sinteren van kristallijne stoffen een diffusieproces, en het is bekend dat daarvoor lege roosterplaatsen, ook wel vacatures genoemd, nodig zijn.

Het is sinds enige jaren duidelijk geworden dat in dit laatste opzicht ionenverbindingen zich kenmerkend onderscheiden van metalen. In metalen is de concentratie van vacatures meestal uitsluitend van de temperatuur afhankelijk, en daardoor niet goed onafhankelijk instelbaar. Daarentegen zijn in ionogene kristallen vaak grote afwijkingen van de zg. stoechiometrische samenstelling mogelijk. De concentraties van de roosterfouten in het kristal worden nu niet alleen door de temperatuur bepaald maar hangen ook af van de gekozen chemische samenstelling. Uit recente onderzoekingen van Reijnen is gebleken dat, omdat voor optimaal

[7] Zie voor het werk van Frenkel en de andere hier genoemde onderzoekers de volgende overzichtsartikelen:
H. Fischmeister en E. Exner, Theorien des Sinterns, Metall **18**, 932-940, 1964 en **19**, 113-119 en 941-946, 1965;
R. L. Coble en J. E. Burke, Sintering in ceramics, Progress in Ceramic Science **3**, 197-251, 1963;
F. Thümmler en W. Thomma, The sintering process, Metall. Revs. **12**, 69-108, 1967.

[8] A. L. Stuijts, Proc. Brit. Ceram. Soc. **2**, 73, 1964.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

sintergedrag zowel kationen als anionen getransporteerd moeten worden, de keuze van de roostervacatures en de concentratie ervan uiterst belangrijk is [9]. Opmerkelijk is b.v. dat waarschijnlijk het wezenlijke van de toevoeging van magnesiumoxide aan aluminiumoxide het creëren is van de juiste roostervacatures voor goede sinterbaarheid!

De grote waarde van de hierboven geschetste inzichten is dat voor de praktijk duidelijk regels zijn te geven om een goed sinterresultaat mogelijk te maken. Het is op dit moment nog niet duidelijk vast te stellen of een effect van korrelgroeiremming, door een geschikt gekozen verontreiniging, op zichzelf voldoende is voor een goed sinterresultaat. In tegenstelling tot het regelen van de stoechiometrie, is op grond van de beschikbare kennis van korrelgroeiverschijnselen géén duidelijke praktische richtlijn aan te geven om daarmee het sinterresultaat te verbeteren.

In de eerste plaats hebben de inzichten geleid tot een levendige interesse in de ontwikkeling van nieuwe processen voor de synthese van grondstoffen en verbindingen. Het maken van sinterreactieve poeders op klassieke wijze, door mengen, voorstoken en malen, levert slechts beperkte mogelijkheden op. Bovendien is het zo, dat de inzichten over de rol van vacatures alleen maar dan kunnen worden toegepast als de gekozen chemische samenstelling inderdaad hun aard en concentratie bepaalt. Verontreinigingen kunnen dan zeer storend werken, en „p.p.m." is nu in dit gebied ook een normaal gehanteerd begrip geworden. De ontwikkeling van processen voor de bereiding van grondstoffen, waarbij de zuiverheid bewaard blijft of een zuivering tijdens het proces plaatsvindt, en waarin de chemische samenstelling goed kan worden beheerst en ingesteld, is in volle gang. In het gebied van de elektronische materialen is er een grote belangstelling voor de bereiding van verbindingen via sproeidrogen of vriesdrogen van gemengde zouten. Op het terrein van de kernenergie is het sol-gelproces tot ontwikkeling gekomen, met unieke mogelijkheden [10]. Al deze processen kunnen leiden tot poeders met grote zuiverheid en hoge sinterreactiviteit.

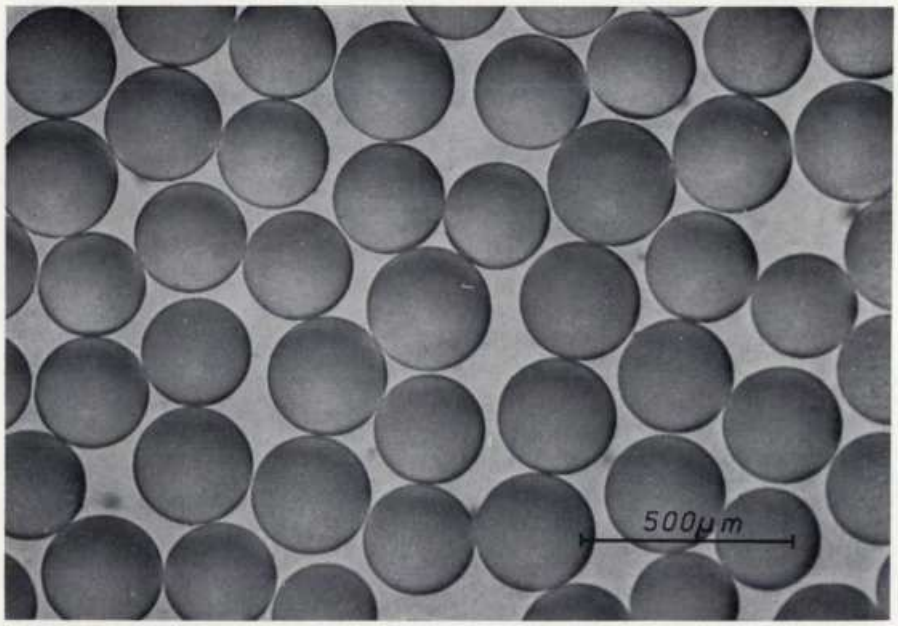


Fig. 8. Bolletjes Al_2O_3, verkregen door sinteren van een zeer homogeen verdeeld, fijn poeder dat volgens het sol-gelproces [10] vervaardigd is. (Overgenomen met toestemming van Atomic Energy Research Establishment, Harwell.)

Ik heb in het voorgaande een beeld gegeven van een aantal basisaspecten van het sinterproces, die de uiteindelijke microstructuur bepalen. Door de grote verscheidenheid in materialen en toepassingen is er een groot aantal, soms zeer complexe, sinterverschijnselen die hier buiten beschouwing moeten blijven. Zij vormen een boeiend gebied voor de onderzoeker die de microstructuren in de materialen wil begrijpen vanuit de optredende processen. Ik wil nu een aantal punten naar voren brengen die kenmerkend zijn voor de *technologie* van moderne keramische materialen, waarbij materiaalsynthese „naar maat" voorop staat.

De poeders die met deze processen worden verkregen, lenen zich niet altijd voor toepassing in een normaal vormgevingsproces. Vaak is het niet mogelijk om ze tot een gewenste hoge dichtheid te persen. Met het sol-gelproces kunnen uiterst fraaie bolletjes, met afmetingen tussen enkele microns en enkele millimeters,

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

worden verkregen (*fig. 8*). Het is echter nog niet goed gelukt de intrinsieke voordelen van dit proces te behouden wanneer men andere vormen wil maken. Daarom is het nodig de vormgeving, en wel speciaal de invloed van de karakteristieke kenmerken van de gebruikte poeders op de verdichting, in studie te nemen.

Van groot belang ten slotte is de ontwikkeling van processen waarmee microstructuren kunnen worden gevormd die met het normale proces nauwelijks of in het geheel niet realiseerbaar zijn. Ik denk hierbij aan materialen met een kristallografische textuur van de samenstellende kristallieten, zoals vereist voor optimale eigenschappen van de hexagonale, permanent magnetische ferrieten. Andere voorbeelden zijn verbindingen met vluchtige componenten, of verbindingen waarbij men niet vrij is om de chemische samenstelling te kiezen om een goede sinterbaarheid te verkrijgen. Ook wil men vaak materialen hebben met een gering porievolume en toch een zeer kleine kristallietgrootte. Voor vele van deze gevallen hebben processen waarbij tegelijk hoge temperatuur en hoge druk worden toegepast, grote betekenis [11]. Door de toegepaste uitwendige druk kan de sintertemperatuur aanzienlijk worden verlaagd, en daardoor de korrelgroei sterk onderdrukt worden. Hierdoor zijn vele materialen met interessante eigenschappen verkregen. Bij voorbeeld microgolfferrieten voor toepassing bij grote vermogens van de microgolfenergie, magnesiumoxide met zeer grote mechanische sterkte, fijnkristallijn aluminiumoxide, en het piëzo-elektrische materiaal kalium-natriumniobaat, dat op normale wijze niet gesinterd kan worden.

De in het voorgaande beschreven renaissance in de keramische technologie is een typisch voorbeeld van de wijze waarop vele nieuwe materialen in de moderne techniek ontstaan en worden gebruikt. Kenmerkend in de verschillende materiaaltechnologieën is het beheersen van fysische en mechanische eigenschappen door het beheersen van microstructuren. Voor de synthese van materialen is het essentieel de processen die de vorming van deze structuren bepalen, te beheersen. Dit is produkt- en proceskunde beide, waarbij de taak voor de technoloog vooral is ervoor te zorgen dat hij, of zij, het industrieel meest geschikte proces weet aan te geven om in een materiaal de gewenste microstructuur te verkrijgen.

Samenvatting. Inhoud van de rede, door de auteur uitgesproken bij de aanvaarding van het ambt van buitengewoon hoogleraar aan de Technische Hogeschool te Eindhoven. Omstreeks 1950 heeft zich een doorbraak voltrokken in de keramische technologie. Nieuwe inzichten hebben tot een zodanige beheersing van de microstructuur geleid, dat de materialen aangepast kunnen worden aan de eisen die de praktijk stelt. Besproken worden het gebruik van speciale toevoegsels, het werken met zeer fijne en zeer zuivere poeders met een hoge sinterreactiviteit, bij voorbeeld gemaakt door sproeidrogen of vriesdrogen of met het sol-gel-proces, het gebruik van materialen met een kleine afwijking van de stoechiometrische samenstelling, het gelijktijdig toepassen van hoge druk en hoge temperatuur, enz.

---

[9] P. J. L. Reijnen, in: Reactivity of solids, Proc. 6th Int. Symp., Schenectady 1968, blz. 99. Zie ook het artikel van deze auteur in Philips techn. T. **31**, 25, 1970 (no. 1).

[10] Binnenkort verschijnt over deze verschillende methodes een overzichtsartikel van de hand van de auteur in Science of Ceramics **5**, 1970.

[11] Zie b.v. G. J. Oudemans, Philips techn. T. **29**, 45, 1968.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Een voorschakelapparaat voor lange fluorescentielampen

J. C. Moerkens

De halfgeleidertechnieken van vandaag bieden bij het ontwerpen van „TL"-voorschakelapparaten vele nieuwe mogelijkheden. Schakelingen die vroeger om redenen van betrouwbaarheid, kostprijs, rendement of levensduur niet in aanmerking konden komen, worden nu met succes toegepast.

Bij de verlichting van grote ruimten zijn met lange fluorescentielampen fraaiere effecten te verkrijgen dan met korte. Bovendien hebben lange fluorescentielampen een beter rendement. Het verlies dat optreedt aan de elektrodes doordat de katodeval van een gasontlading geen straling levert, is onafhankelijk van de lengte van de lamp en is dus voor langere lampen relatief lager. Ook zijn montage- en onderhoudskosten per lengte-eenheid geringer naarmate de lampen langer zijn. Om al deze redenen zijn er de laatste jaren naast de gebruikelijke fluorescentielampen van 1 à 1,5 m lengte — de 4- en 5-voets typen — ook lampen van ca. 2,5 m, de zg. 8-voets lampen, ontwikkeld.

Door hun grotere lengte hebben deze 8-voets lampen een hogere ontsteekspanning en een hogere brandspanning dan de thans gangbare typen. De algemeen gebruikelijke glimlichtstarters (*fig. 1a*) zijn daardoor voor de 8-voets lampen niet bruikbaar. Deze starters zijn destijds ontwikkeld voor het ontsteken van lampen met een brandspanning van 100 V bij een voedingsspanning van 220 V; de brandspanning van de lange lampen is 180 V en ligt te dicht bij de voedingsspanning dan dat de glimlichtstarters nog betrouwbaar kunnen werken. Ook alternatieve oplossingen, zoals starterloze schakelingen of ontsteking met een hulpcircuit, hebben enige bezwaren. De starterloze schakeling (fig. 1*b*) vereist voor 8-voets lampen een transformator met een open spanning van ten minste 350 V. Een dergelijke transformator zou, samen met de voor stabilisatie van de lamp vereiste spoelen, duur worden en te hoge elektrische verliezen opleveren. Bovendien zijn in deze schakeling doorgaans speciale lampen nodig — voorzien van een gemetalliseerde ontsteekstrip — of is het noodzakelijk dat een geaard metalen armatuur wordt gebruikt. De andere mogelijkheid, het starten van de lamp met een hulpcircuit (doorgaans een resonantiecircuit), heeft het nadeel dat ook na het ontsteken van de lamp stroom door dit circuit blijft vloeien. Om, ter vermijding van deze verliezen, het hulpcircuit na het starten uit te schakelen zijn echter schakelaars of relais nodig, wat de aanschaffings- en onderhoudskosten van de installatie verhoogt.

J. C. Moerkens, medewerker van Philips' Hoofdindustriegroep Licht, Eindhoven.

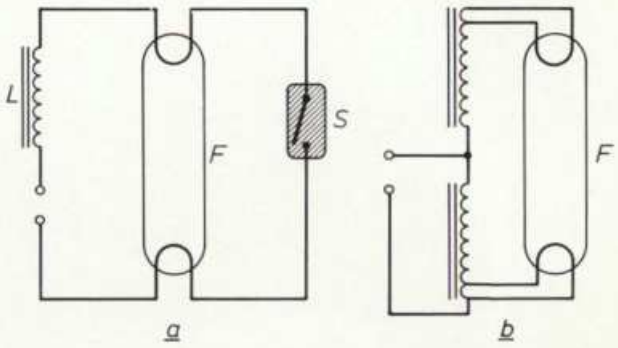


Fig. 1. *a*) Schakeling voor een fluorescentielamp met een glimlichtstarter. *F* fluorescentielamp. *L* serie-impedantie voor stabilisatie van de ontlading. *S* bimetaalglimlichtschakelaar. Vóór het inschakelen van de voedingsspanning is *S* open. In het met neon gevulde ballonnetje ontstaat bij inschakelen van de netspanning een gasontlading; hierdoor wordt het bimetaal verwarmd en de schakelaar sluit zich. De nu vloeiende stroom verhit de elektrodes. De neonontlading is door de gesloten contacten overbrugd en dooft dus, waardoor het bimetaal weer afkoelt en de schakelaar weer open gaat. De hierbij optredende spanningsstoot, veroorzaakt door de zelfinductie *L*, zorgt ervoor dat de lamp ontsteekt. De glimlichtschakelaar is zo gedimensioneerd dat de neonontlading ontsteekt op de laagst voorkomende netspanning, doch niet op de brandspanning van de lamp.
b) Starterloze schakeling. De transformator levert in onbelaste toestand de spanning voor de verhitting der elektrodes alsmede de ontsteekspanning voor de lamp. Na het ontsteken daalt de spanning over de lamp, doordat de spanning over het bovenste deel van de transformator, dat als voorschakelimpedantie dienst gaat doen, in faze draait. Tijdens het branden blijft de volle gloeispanning op de gloeidraden van de lamp staan. Het onderste deel van de transformator is, als de lamp brandt, een nutteloze belasting van het net.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

De komst van goedkope en betrouwbare halfgeleiderelementen biedt nieuwe mogelijkheden om een lamp te ontsteken met een hulpcircuit, en dit circuit na het ontsteken van de lamp buiten werking te stellen zonder dat hiervoor schakelcontacten nodig zijn, waarmee de bezwaren tegen het ontsteken met een hulpcircuit verdwenen zijn.

Wij beschrijven een door ons ontwikkeld voorschakelapparaat voor 8-voets fluorescentielampen, waarin halfgeleiderelementen als schakelaar zijn gebruikt. Het voorschakelapparaat is geconstrueerd voor voeding uit een normaal wisselspanningsnet (b.v. 220 V, 50 Hz, één faze).

Principe van het voorschakelapparaat

Een voorschakelapparaat voor fluorescentielampen dient om te zorgen voor ontsteking en voor stabilisatie van de lamp. Voor het ontsteken moeten eerst de elektrodes worden verwarmd en vervolgens moet een spanningsstoot van voldoende grootte worden geleverd om de ontlading in de lamp te starten.

De starter van ons voorschakelapparaat (*fig. 2*) bestaat in principe uit twee spoelen, L_1 en L_2, een condensator C, en een schakelaar S. De spoelen vormen samen met de condensator twee trillingskringen L_1-C en L_2-C, die beurtelings kunnen worden aangestoten door openen en sluiten van de schakelaar. De spoel L_1 dient tevens ter stabilisatie van de lampstroom tijdens het branden.

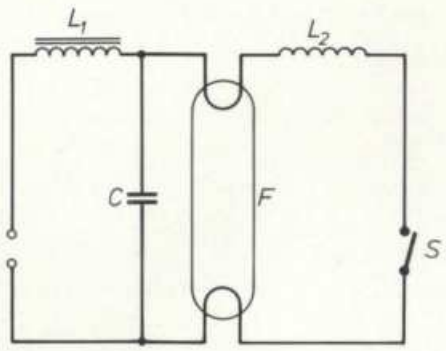


Fig. 2. Principeschema van het voorschakelapparaat voor lange fluorescentielampen. De condensator C neemt energie op uit het net. Na het sluiten van de schakelaar S wordt deze energie door de trillingskring L_2-C voor een deel in de elektrodes van de lamp gedissipeerd. Wordt S weer geopend op het moment dat C geladen is, dan zal door opslingering in de kring L_1-C de voor ontsteking van de ontlading nodige spanningsstoot over de lamp F ontstaan. Tijdens het branden van de lamp zorgt de spoel L_1 voor stabilisatie van de ontlading.

Voor het beschrijven van de werking van de starter nemen we gemakshalve aan dat het circuit op de voedingsspanning wordt aangesloten op het moment dat deze door nul gaat ($t = t_0$, zie *fig. 3*). De schakelaar S is dan geopend. Doordat de eigenfrequentie van de kring L_1-C hoog is gekozen t.o.v. de netfrequentie en de kring bovendien zo is gedimensioneerd dat de impedantie van C veel groter is dan de impedantie van L_1, zal de spanning over C de netspanning zowel naar faze als naar grootte vrijwel volgen. Sluiten we nu op het moment t_1 de schakelaar S, dan wordt de kring L_2-C gevormd. Bij het sluiten van de schakelaar is de condensator geladen; er zal daardoor in deze kring een trilling ontstaan. De zelfinductie van L_2 is veel kleiner gekozen dan die van L_1, zodat de eigenfrequentie van de kring L_2-C veel hoger is dan die van de kring L_1-C. De impedantie van L_1 is voor deze trillingen voldoende hoog om demping van de kring L_2-C door het lichtnet te voorkomen. De als gloeidraden uitgevoerde elektrodes van de lamp vormen de enige demping in de kring. De stroom in de kring verwarmt de gloeidraden, hierdoor daalt de ontsteekspanning van de lamp. We openen nu de schakelaar S op het moment waarop de stroom in de kring L_2-C weer nul is geworden. De kring L_2-C is dan verbroken en de kring L_1-C wordt door het openen van de schakelaar aangestoten. Hierdoor zal de spanning over de condensator opslingeren tot meer dan het dubbele van de ogenblikswaarde van de netspanning. Zijn de elektrodes reeds voldoende voorgewarmd, dan zal de lamp ontsteken; zo niet, dan moet de hele cyclus worden herhaald totdat wèl ontsteking volgt.

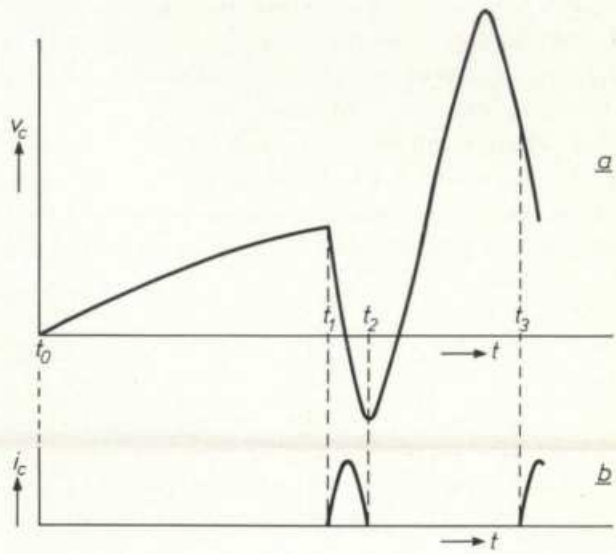


Fig. 3. *a*) Spanning v_c over de condensator C in fig. 2 als functie van de tijd t na het inschakelen van de voedingsspanning op het moment t_0. Op het tijdstip t_1 wordt de schakelaar S gesloten en er ontstaat een trilling in de kring L_2-C. Op het moment t_2 wordt de schakelaar weer geopend en wordt de oscillatie overgenomen door de kring L_1-C. Op het tijdstip t_3 wordt de schakelaar weer gesloten en het hele verschijnsel vanaf $t = t_1$ gaat zich herhalen. *b*) De stroom i_c in de kring L_2-C als functie van de tijd.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Praktische uitvoering; eigenschappen

In het apparaat (*fig. 4*) wordt de functie van de schakelaar S vervuld door een thyristorschakeling. Als één van de beide antiparallel geschakelde thyristors $T_{1,2}$ geleidt, is de schakelaar gesloten. Het moment waarop een thyristor gaat geleiden, wordt bepaald door de RC-tijd van het netwerk bestaande uit de weerstanden R_1, R_2 en R_3 en de condensatoren C_1 en C_2. De condensatoren worden, via de weerstandsketen, geladen door de voedingsspanning. Wanneer nu de spanning over de condensatoren een gegeven waarde overschrijdt, slaat één van de „diacs" $D_{1,2}$ (*fig. 5*) door en een deel van de lading vloeit naar de stuurelektrode van de bijbehorende thyristor, waarop deze gaat geleiden: de schakelaar is gesloten. Wordt de stroom door de geleidende thyristor nul — wat dus al na één halve periode van de trilling in de kring L_2-C gebeurt — dan houdt de geleiding op: de schakelaar wordt weer geopend. Nu zal de spanning over de condensator C opslingeren door de trilling in de kring L_1-C. Na ruim een halve periode van deze trilling zijn inmiddels C_1 en C_2 weer tot de doorslagspanning der „diacs" geladen, de thyristor kan weer geleidend worden en de hele cyclus herhaalt zich. De doorslagspanning der „diacs" zal de tweede maal sneller bereikt worden dan de eerste: de condensatoren behoeven slechts te worden geladen vanaf de doorlaatspanning der „diacs".

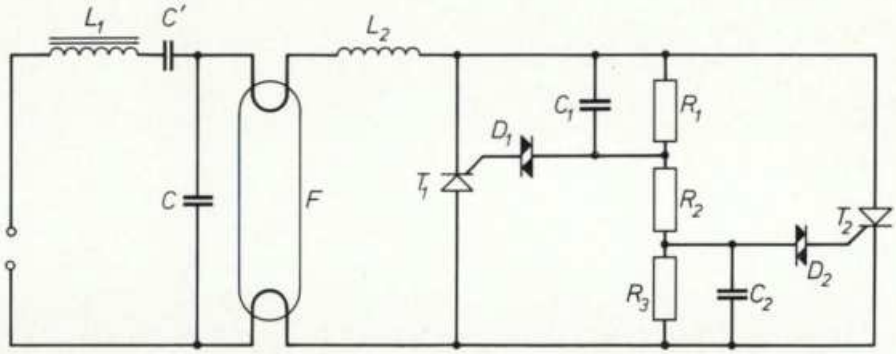


Fig. 4. Volledig schema van het voorschakelapparaat. L_1, L_2 en C als in fig. 2. De thyristors T_1 en T_2 vormen een schakelaar; T_1 kan geleiden gedurende de negatieve halve periode van de voedingsspanning, T_2 gedurende de positieve. Het moment van sluiten wordt bepaald door de RC-keten R_1-R_2-R_3-C_1-C_2. Wanneer de spanning over C_1 en C_2 de doorslagspanning der „diacs" D_1 en D_2 overschrijdt, geeft één van beide een stroomstoot door aan de stuurelektrode van de bijbehorende thyristor, waardoor deze gaat geleiden. De thyristor houdt op te geleiden (schakelaar gaat open) wanneer de stroom die erdoor vloeit nul wordt. Gedurende de volgende halve periode van de netspanning fungeert de andere thyristor als schakelaar.

Gedurende de eerste halve periode van de netspanning wordt de hele cyclus een aantal malen herhaald. Is de voedingsspanning zover gedaald dat zij niet hoog genoeg meer is om C_1 en C_2 te laden tot de doorslagspanning der „diacs", dan wordt de schakelaar niet meer gesloten en de kring L_1-C slingert uit. Doorgaans is de lamp dan nog niet ontstoken, en het hele proces zal zich tijdens de volgende halve periode van de netspanning herhalen, waarbij nu de andere thyristor de schakelaar periodiek opent en sluit. De spanning die tijdens het ontsteken over de lamp staat, is weergegeven in *fig. 6*.

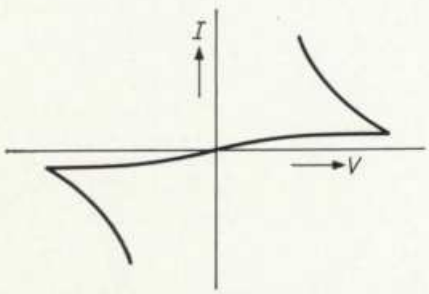


Fig. 5. Stroom-spanningskarakteristiek van een „diac". Een „diac" bestaat uit twee antiparallel geschakelde P-N-P-N-diodes. Deze combinatie heeft een stroom-spanningskarakteristiek die enige overeenkomst vertoont met die van een gasontlading. Er is een bepaalde spanning nodig voordat de „diac" gaat geleiden, daarna kan de spanning een flink eind dalen voordat de stroom wordt onderbroken.

Het branden van de lamp

Brandt de lamp eenmaal, dan zal de spanning over de lamp een vrijwel rechthoekig verloop hebben (*fig. 7*). De amplitude van deze rechthoekige spanning is gelijk aan de brandspanning van de lamp, en is dus kleiner dan die van de voedingsspanning. De spanningsdeler R_1-R_2-R_3 is zo gedimensioneerd dat de condensatoren C_1 en C_2 door deze rechthoekige spanning niet meer tot de doorslagspanning der „diacs" kunnen worden geladen, de thyristors krijgen dus geen stuurimpulsen meer en de schakelaar blijft nu verder voortdurend geopend. De startschakeling is op deze wijze buiten werking gesteld.

Tijdens het branden van de lamp dooft de ontlading

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

na iedere halve periode van de voedingsspanning en moet dan weer worden ontstoken. Voor een korte lamp, waarvan de brandspanning ongeveer de helft van de netspanning is, levert dit geen moeilijkheden. Na het doven van de ontlading valt snel ook de spanning over de als voorschakelelement gebruikte smoorspoel weg en de volle ogenblikswaarde van de netspanning komt over de lamp te staan (*fig. 8a*). Deze spanning is voldoende om de zojuist gedoofde ontlading opnieuw te ontsteken.

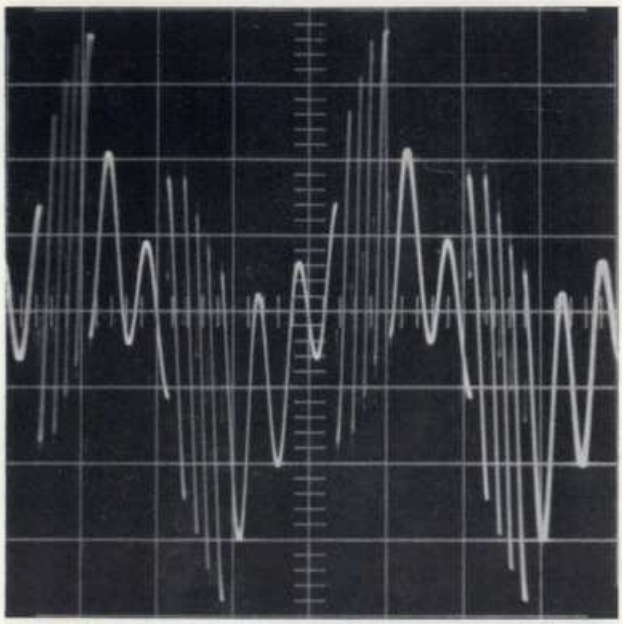


Fig. 6. Oscillogram van de spanning over de lamp tijdens het ontsteekproces. De groepen snel op elkaar volgende pieken, die zich elke halve periode herhalen, zijn de in de kringen L_1-C en L_2-C optredende opslingerverschijnselen (vgl. fig. 3).

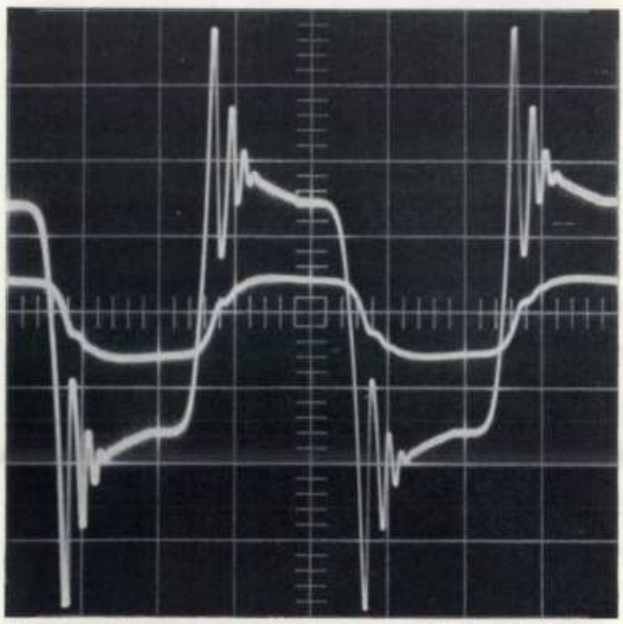


Fig. 7. Oscillogram van de spanning over de brandende lamp (curve met grote amplitude) en van de spanning over de condensatoren C_1 en C_2 in fig. 4 (curve met kleine amplitude). In de spanning over de lamp zijn duidelijk de herontsteekpieken met de daarop volgende oscillaties te zien. Door fazedraaiing en afvlakking treden deze pieken niet op in de spanning over de condensatoren.

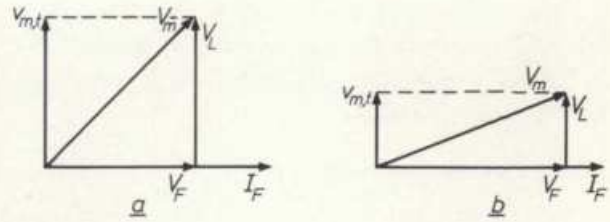


Fig. 8. *a*) Vectordiagram voor een „TL" lamp met een brandspanning V_F die veel kleiner is dan de netspanning V_m.
b) Idem, voor het geval dat V_F slechts weinig lager is dan de netspanning. In het laatste geval is de spanning $v_{m,t}$ die voor het herontsteken van de lamp moet zorgen, te klein. V_L is de spanning die over de voorschakelimpedantie staat.

Bij een lange lamp, waarvan de brandspanning maar weinig kleiner is dan de netspanning, heeft de voor stabilisatie van de ontlading vereiste smoorspoel een veel kleinere zelfinductie. Hierdoor is de spanning over de lamp na het doven van de ontlading te gering om herontsteking mogelijk te maken (fig. 8*b*). Zetten we nu behalve een spoel ook nog een condensator in serie met de lamp, dan krijgen we de situatie die gegeven is in *fig. 9*. De spanningen over capaciteit en zelfinductie hebben een fazeverschil van 180°, en men kan nu de zelfinductie en de condensator zo groot maken dat de spanning die na het doven van de ontlading over de lamp komt te staan, groot genoeg is voor herontsteken van de ontlading.

Wanneer de lamp brandt, blijft de spanning over de hulpcondensatoren C_1 en C_2 de spanning over de lamp

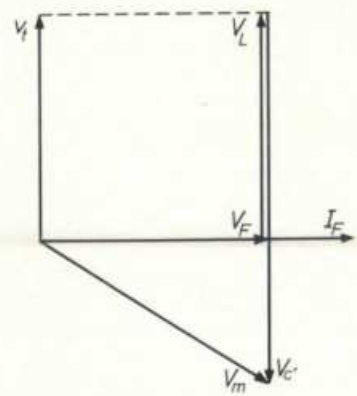


Fig. 9. Vectordiagram voor een lamp met een brandspanning van 180 V die in serie met een spoel en een condensator is aangesloten op een voedingsspanning van 220 V. Nu is, wanneer na het doven van de lamp ook de spanning V_L over de spoel is weggevallen, de spanning v_t over de lamp voldoende om voor herontsteking te kunnen zorgen. $V_{C'}$ is de spanning over de condensator C' (fig. 4), voor de overige grootheden zie fig. 8.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

volgen. Dit gebeurt echter, zoals uit fig. 7 blijkt, met enige vertraging. Hierdoor zal er bij het herontsteken van de lamp op de stuurelektrodes van de thyristors een negatieve spanning staan, waardoor de thyristors beter bestand zijn tegen de spanningspieken die zij tijdens dit herontsteken te verduren krijgen.

Ook voorkomt de negatieve lading op de condensatoren dat deze door de herontsteekpiek zouden worden geladen tot boven de ontsteekspanning van de „diacs", waardoor de startschakeling toch nog weer zou gaan werken.

Fazedraaiing en netstroomvervorming

Doordat de brandspanning van een 8-voets lamp dicht bij de netspanning ligt, is het fazeverschil tussen de netspanning en de door de lamp vloeiende stroom gering (fig. 9). Er zijn dan ook voor de lange lampen geen speciale fazecorrectiemaatregelen nodig, zoals bij de 4- en 5-voets typen het geval is.

We hebben reeds gezien dat over de klemmen van de brandende lamp een spanning staat die als functie van de tijd een min of meer rechthoekig verloop heeft. Fourier-analyse van een dergelijke spanning toont dat zij sterke oneven harmonischen bevat. Uiteraard mogen deze harmonischen van de voedingsfrequentie niet in het lichtnet geraken, evenmin als de door de ontsteekpiek veroorzaakte hoogfrequente componenten; zij zouden elders tot storingen aanleiding kunnen geven. In het door ons ontwikkelde voorschakelapparaat vormen de condensator C en de spoel L_1, die voor de normale functie van het voorschakelapparaat nodig zijn, een zeer effectief filter (vgl. fig. 4), zowel voor de 3^e en 5^e als voor hogere harmonischen. Extramaatregelen om te voorkomen dat de lamp stoorsignalen in het lichtnet veroorzaakt, zijn dus overbodig.

Tot slot nog enige praktische details van het hier beschreven voorschakelapparaat. De totale elektrische verliezen in een apparaat dat geschikt is voor een 85-W-lamp, bedragen tijdens het branden slechts 12 W (inclusief de verliezen aan de elektrodes van de lamp). De arbeidsfactor (cos φ) bedraagt 0,8 (capacitief). Een geaard metalen armatuur of speciale lampen, voorzien van een ontsteekstrip, zijn bij toepassing van dit voorschakelapparaat niet nodig.

Samenvatting. Voor het ontsteken van fluorescentielampen met een lengte van ca. 2,5 m, die vooral voor de verlichting van grote ruimten fraaie resultaten leveren, zijn de normale glimlichtstarters niet bruikbaar. De brandspanning van deze lange lampen ligt nl. zo dicht bij de netspanning dat glimlichtstarters niet betrouwbaar meer werken. Bij het in dit artikel beschreven voorschakelapparaat wordt de lamp ontstoken met behulp van een resonantiecircuit dat, om onnodig energieverbruik te voorkomen, tijdens het branden van de lamp wordt uitgeschakeld. Hiervoor worden, als goedkope en betrouwbare schakelaar, twee antiparallel geschakelde thyristors gebruikt. Deze schakelaar wordt via twee „diacs" bestuurd door een R-C-keten die is aangesloten over de elektrodes van de lamp.

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

Recente wetenschappelijke publikaties

Deze publikaties zijn afkomstig van medewerkers van laboratoria en fabrieken, behorende tot of samenwerkende met ondernemingen van het Philipsconcern, in het bijzonder van medewerkers van de navolgende research-laboratoria:

Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven *E*
Mullard Research Laboratories, Redhill (Surrey), Engeland *M*
Laboratoires d'Electronique et de Physique Appliquée, Limeil-Brévannes (Val-de-Marne), Frankrijk *L*
Philips Forschungslaboratorium Aachen GmbH, Weißhausstraße, 51 Aachen, Duitsland *A*
Philips Forschungslaboratorium Hamburg GmbH, Vogt-Kölln-Straße 30, 2000 Hamburg 54, Duitsland *H*
MBLE Laboratoire de Recherches, 2 avenue Van Becelaere, 1170 Brussel (Boitsfort), België. *B*

Van de meeste dezer publikaties zullen binnenkort overdrukken beschikbaar zijn. Men kan deze aanvragen bij het betrokken laboratorium (zie de codeletter) of bij de Administratie van Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven.

G. A. Acket, H. 't Lam & W. Heinle (Forschungsinstitut AEG-Telefunken, Ulm/Donau): The low-temperature velocity-field characteristic of *n*-type gallium arsenide.
Physics Letters **29A**, 596-597, 1969 (No. 10). *E*

W. Albers & J. Verberkt: Isothermal substitutional growth of single crystals.
Philips Res. Repts. **25**, 17-20, 1970 (No. 1). *E*

K. Bethe: Über das Mikrowellenverhalten nichtlinearer Dielektrika.
Thesis, Aachen 1969. *H*

G. Blasse: Lanthanide tellurates Ln_6TeO_{12}.
J. inorg. nucl. Chem. **31**, 3335-3336, 1969 (No. 10). *E*

J. C. Brice: Facet formation during crystal pulling.
J. Crystal Growth **6**, 205-206, 1970 (No. 2). *M*

J. C. Brice, G. W. Lelievre & P. A. C. Whiffin: Hydropneumatic apparatus for the Czochralski growth of crystals.
J. sci. Instr. (J. Physics E), ser. 2, **2**, 1063-1065, 1969 (No. 12). *M*

K. H. J. Buschow & H. J. van Daal: Evidence for the presence of the Kondo effect in the compound $CeAl_2$.
Phys. Rev. Letters **23**, 408-409, 1969 (No. 8). *E*

P. J. Buysman & G. A. L. Peersman: Stability of ceilings in a fluidized bed.
Proc. Int. Symp. on Fluidization, 1967, pp. 38-52. *E*

T. D. Clark & D. R. Tilley (Physics Dept., University of Essex, Colchester): Bulk mean field fluctuations in resistance of arrays of superconducting point contacts above T_c.
Physics Letters **29A**, 514-515, 1969 (No. 9). *E*

Ph. Delsarte: A geometric approach to a class of cyclic codes.
J. combin. Theory **6**, 340-358, 1969 (No. 4). *B*

G. Engelsma: The influence of light of different spectral regions on the synthesis of phenolic compounds in gherkin seedlings, in relation to photomorphogenesis, VI. Phenol synthesis and photoperiodism.
Acta bot. neerl. **18**, 347-352, 1969 (No. 2). *E*

J.-F. Etaix: Etude du rayonnement lumineux émis lors d'une striction azimutale dans l'argon.
C.R. Acad. Sci. Paris **268B**, 230-233, 1969 (No. 3). *L*

I. Flinn & P. J. Hulyer: Testing piezoelectric ceramics for power transducer applications.
Ultrasonics for Industry 1969 Conf. Papers, pp. 47-50. *M*

Y. Genin: Polynomial approximations in perturbational navigation and guidance schemes.
Advanced Problems of Mechanics for Space Flight Optimization, ed. B. Fraeys de Veubeke, Pergamon, Oxford 1969, pp. 13-24. *B*

H. C. de Graaff: Gate-controlled surface breakdown in silicon *p-n* junctions.
Philips Res. Repts. **25**, 21-32, 1970 (No. 1). *E*

G. Groh & C. H. F. Velzel: Fehlerquellen bei der holographischen Bildvervielfachung.
Optik **30**, 257-272, 1969 (No. 3). *E, H*

W. van Haeringen & H.-G. Junginger: Empirical pseudopotential approach to the band structures of diamond and silicon carbide.
Solid State Comm. **7**, 1135-1137, 1969 (No. 16). *E, A*

S. H. Hagen & C. J. Kapteyns: The ionization energy of nitrogen donors in 6H and 15R SiC.
Philips Res. Repts. **25**, 1-7, 1970 (No. 1). *E*

B. B. van Iperen, H. Tjassens & J. J. Goedbloed: On the relation between microwave series resistance, capacitance, and output power of IMPATT diodes.
Proc. IEEE **57**, 1341-1342, 1969 (No. 7). *E*

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!

www.freeservicemanuals.info 11/14/2023

J. Liebertz: Dimorphie von Lithiumjodat ($LiJO_3$).
Z. phys. Chemie Neue Folge **67**, 94-97, 1969 (No. 1-3). *A*

F. K. Lotgering: On the double-exchange interactions in $La_{1-x}Ba_xMnO_3$.
Philips Res. Repts. **25**, 8-16, 1970 (No. 1). *E*

M. H. van Maaren & H. B. Harland: An energy band model of Nb- and Ta-dichalcogenide superconductors.
Physics Letters **29A**, 571-573, 1969 (No. 9). *E*

F. Meyer & G. A. Bootsma: Ellipsometric investigation of chemisorption on clean silicon (111) and (100) surfaces.
Surface Sci. **16**, 221-233, 1969. *E*

F. Meyer & G. A. Bootsma: Ellipsometrie.
Ned. T. Natuurk. **35**, 154-160, 1969 (No. 5/6). *E*

K. Mouthaan: Nonlinear characteristics and two-frequency operation of the avalanche transit-time oscillator.
Philips Res. Repts. **25**, 33-67, 1970 (No. 1). *E*

J. A. van Nielen: A simple and accurate approximation to the high-frequency characteristics of insulated-gate field-effect transistors.
Solid-State Electronics **12**, 826-829, 1969 (No. 10). *E*

P. Reijnen: Non-stoichiometry and sintering of ionic solids.
Reactivity of Solids, Proc. 6th Int. Symp., Schenectady 1968, pp. 99-114. *E*

J. G. Rensen & J. S. van Wieringen: Anisotropic Mössbauer fraction and crystal structure of $BaFe_{12}O_{19}$.
Solid State Comm. **7**, 1139-1141, 1969 (No. 16). *E*

C. J. M. Rooymans: Chemical processes in high-pressure systems.
Reactivity of Solids, Proc. 6th Int. Symp., Schenectady 1968, pp. 743-761. *E*

H. Schweppe: Electromechanical properties of bismuth germanate $Bi_4(GeO_4)_3$.
IEEE Trans. **SU-16**, 219, 1969 (No. 4). *A*

T. L. Tansley: Opto-electronic properties of heterojunctions — a review.
Opto-electronics **1**, 143-150, 1969 (No. 3). *M*

H. Tazieff & M. Jatteau: Mesure dans l'infrarouge des paramètres physiques des gaz éruptifs.
C.R. Acad. Sci. Paris **268D**, 767-770, 1969 (No. 5). *L*

G. Winkler & P. Hansen: Calcium-vanadium-indium substituted yttrium-iron-garnets with very low linewidths of ferrimagnetic resonance.
Mat. Res. Bull. **4**, 825-837, 1969 (No. 11). *H*

Inhoud van Philips Telecommunication Review **29**, No. 1, 1970:

C. M. de Zeeuw: HF communication systems (pp. 1-10).
E. Timmermans: New mechanical design for telephone transmission equipment (pp. 11-22).
C. Ziekman: The 8TR 601 pulse code modulation system (pp. 23-31).
G. Lind: Measurement of sea clutter correlation with frequency agility and fixed frequency radar (pp. 32-38).

Inhoud van Electronic Applications **29**, No. 2, 1969:

G. van Dijk & G. Wolf: Recent developments in circuits and transistors for television receivers: X. A mixer transistor for v.h.f., XI. Coupling a v.h.f. mixer transistor to a double-tuned band-pass filter (pp. 39-46, 47-55).
The 7A65X: a shadow-mask picture tube with 110° deflection (pp. 56-57).
F. T. Backers: An ultrasonic delay line for chrominance signal correction (pp. 59-70).
A counter tube for radiation dosimetry (p. 71).

Inhoud van Valvo Berichte **15**, No. 4, 1969:

E. Pech: Ein integrierter Synchrondemodulator für Farbfernseh-Empfänger (pp. 109-121).
H. H. Feindt: Die Entwicklung eines integrierten RGB-Verstärkers für Farbfernseh-Empfänger (pp. 122-138).

Jaargang 31, 1970, no. 2 blz. 37-64 Verschenen 11 september 1970

Digitized in Heiloo the Netherlands Not for sale!